

THÈSES

PRÉSENTÉES

A LA FACULTÉ DES SCIENCES
DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ÈS-SCIENCES PHYSIQUES

PAR

Mehdi NEZAMI

PREMIÈRE THÈSE

Contribution à l'étude du comportement géophysique du plomb 210
par application de la spectrométrie alpha

DEUXIÈME THÈSE

Propositions données par la Faculté

Poussières cosmiques dans l'atmosphère

Soutenues le 18 juin 1965 devant la Commission d'examen

MM. VASSY

Président

LEFORT

LABEYRIE

LAMBERT

}

Examineurs

Invité

THÈSES

PRÉSENTÉES

A LA FACULTÉ DES SCIENCES
DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ÈS-SCIENCES PHYSIQUES

PAR

Mehdi NEZAMI

PREMIÈRE THÈSE

Contribution à l'étude du comportement géophysique du plomb 210
par application de la spectrométrie alpha

DEUXIÈME THÈSE

Propositions données par la Faculté

Poussières cosmiques dans l'atmosphère

Soutenues le 18 juin 1965 devant la Commission d'examen

MM. VASSY

Président

LEFORT

LABEYRIE

LAMBERT

} Examineurs
Invité

FACULTÉ DES SCIENCES DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS

PROFESSEURS

Doyen... M. ZAMANSKY

MM.	BRELOT	T Analyse supérieure	Mlle	MAGAT	T Physico chimie des radioéléments
	PRENANT	T Anatomie et histologie comparée		QUINTIN	T Electrochimie
	GRASSE	T Evolution des êtres organisés		MONOD	T Chimie du métabolisme
	PREVOST	T Chimie Organique		BENOIT	T Physio. animale (Orsay)
	WYART	T Minéral & Cristallog.		DE POSSE	T Analyse numérique
	TEISSIER	T Zoologie		CHARLOT	T Chimie analytique
	MANGENOT	T Biologie végét. (Orsay)		LEMEZ	T Ecologie végétale (Orsay)
	AUGER	T Physique quantique et relativité		GUERIN	T Chimie MPC (Orsay)
	MONNIER	T Physiologie générale		CHATELET	T Chimie PCB
	PIVETEAU	T Paléontologie		JEAN	T Physio. nucléaire (Orsay)
	ROCARD	T Physique ENS		MATTLER	T Physique SPNC
	CARTAN	T Mathématiques ENS		BERGERARD	T Zoologie (Orsay)
	LAFFITTE N.	T Chimie générale		BERTIN	T Electronique (Orsay)
	COULOMB	T Physique du globe		BOUSSIERES	T Radiochimie
Mlle	COUSIN	T Biologie animale SPNC	Mme	COUTURE	T Thermo. et méca. physique
	CHRETIEN	T Chimie minérale		ELLENBERGER	T Géologie des grandes régions du globe (Orsay)
	BOCQUET	T Zoologie		FRANC	T Biologie animale PCB
	KASTLER	T Génétique		SCHNELL	T Botanique tropicale
	EPHRESSI	T Géologie SPNC & Sédiment (Orsay)		STLAKOWSKI	T Physiologie végétale
	RIVIERE	T Biologie végétale PCB		ACHER	T Chimie biologique
	GAUTHERET	T Recherches Physiques		BAUDOUIN	T Biologie animale PCB
	LUCAS R.	T Biologie cellulaire		BEAUMONT	T Biologie animale SPNC
	THOMAS A.	T Optique appliquée		BLAMONT	T Géophysique ionosphère
	ARNULF	T Physique enseignement		BOUREAU	T Botanique
	SOLEILLET	T Physique PCB		CURIE D.	T Physique MGP
	PORTIER	T Mécanique exp. des fluides		DURAND DELGA	T Géologie
	DRACH	T Zoologie		FREON	T Chimie organique (Orsay)
	QUENY	T Météo & Dynamique atmos.		HELLER	T Physiologie végétale
	GALLIE	T Embryologie		TORTRAT	T Calcul des probabilités
	REICHORN	T Botanique		CAILLEUX	T Géologie SPNC
	DE CUGNAC	T Biologie végétale SPNC		MAGNAN	T Physique électrochimie
Mlle	CAUCHOIS	T Chimie physique		DAUDEL	T Mécanique ondulatoire appl. à la Chimie
	THELLIER	T Physique du globe	Mlle	FOURCROY	T Biologie végétale SPNC
	L'HERITIER	T Biologie générale Orsay	Mme	CHOUQUET BRUHAT	T Mécanique analytique et méca. céleste
	GRIVET	T Radioélectricité Orsay	Mlle	VEIL	T Physiologie générale
	PONCIN	T Mécanique générale		LWOFF	T Microbiologie
	DU BREL	T Arith. & Théorie des nombres		SIESTRUNK	T Méca. phys. & expérimentale
	QUELET	T Chimie organique		LACOMBE	T Métallurgie des métaux nucléaires (Orsay)
	GAGNIARD	T Géophysique appliquée		BROCHARD	T Physique PCB (Orsay)
	CHAMPETIER	T Chimie macromoléculaire		CABANNES	T Mécanique générale
	CUVILLER	T Micropaléontologie		LESIEUR	T Math. I (Orsay)
	JUNG	T Géologie		MAZET	T Méca. générale (Orsay)
	TRILLAT	T Microscopie et diffraction électro.		CAIRE	T Géographie physique et géo. dynamique
	WIEHMANN	T Chimie organ. & struc.		COMOLET	T Méca. des fluides
	JACQUINOT	T Spectroscopie et Physique céleste (Orsay)		CORABOEUF	T Physiologie animale (Orsay)
	VASSY	T Physique de l'atmosphère		DELLOUE	T Physique de l'atmosphère
	DESTOUCHES	T Théorie physique		GORENLOT	T Botanique II (Orsay)
	AMIEL	T Chimie générale		HOUILLON	T Biologie animale PCB
	HOCART	T Minéral. & Cristallog.		JULLIEN J.	T Chimie SPNC (Orsay)
	MATHEU J.P.	T Physique optique		MALGRANGE	T Technique Math. de la physique (Orsay)
	COUTEAUX	T Cytologie		OLIVIER	T Antropologie
	MAY	T Zoologie		NOZERAN	T Botanique II (Orsay)
	CHOQUET	T Théorie des fonctions et topologie		BLANC-LAPIERRE	T Physique ENS (Orsay)
	FELDMANN	T Biologie végétale marine		CHEVAUGNON	T Botanique (Orsay)
	GUINIER	T Physique des solides (Orsay)		KAHANE	T Mathématiques (Orsay)
	JOST	T Physiologie comparée		SAMUEL	T Mathématiques ENS féminines
	PORTET	T Calcul des probabilités et Phys. Mathém.		KOUGNANOFF	T Astronomie (Orsay)
	SCHWARTZ	T Calcul diff. & Intégral		THIERY	T Méca. céleste
	CHOUARD	T Physiologie végétale		ABELES	T Physique SPNC
	MALAYARD	T Aviation (Tech. Aéron.)		AMAT	T Physique PCB
	NORMANT	T Synthèse organique		AUBOIN	T Géologie
	BUVAT	T Chimie minérale	Mme	BENOIT-GUEUTAL	T Physique nucléaire et radioactivité (Orsay)
	DUGUE	T Botanique ENS		BOUGIS	T Biologie marine Villefranche/mer
	SOULAIRAC	T Statistique mathématiques		BRUHAT	T Math. MPC
	ULRICH	T Physiologie Vég. Appl.		BRUNN	T Géologie historique (Orsay)
	MARECHAL	T Optique théor. & appl.		CHABBAL	T Physique MGP (Orsay)
	KIRRMANN	T Théories chimiques		DEHEUVELS	T Math. prop.
	CHADEFAUD	T Botanique		D'ESPAGNAT	T Physique théorique (Orsay)
Mlle	LE BRETON	T Physiol. de la nutrition		FURON	T Géologie SPNC
	LELONG	T Application de l'analyse à la géométrie	Mme	GAUS	T Génétique
	DEVILLIERS	T Anatomie & Hist. compar.		GENEVES	T Biologie végétale PCB
	EHRESMANN	T Topologie algébrique		GUILBERT	T Physique CUS Orléans
	FRANCON	T Physique SPNC		HUPE	T Pétrographie
	CLANEAUD	T Géographie phys. & géol.		LIENS	T Biologie générale
	GODEMENT	T Mathématiques MGP		MAITTE	T Analyse numérique
	PISTO	T Technique math. de la phys.		MEYER	T Chimie PCB
	ROCH	T Géologie		PANIGEL	T Physique propédeutique
	SCHATZMANN	T Astrophysique		RAVIER	T Biologie générale
	TERMIER	T Géologie générale		ROSEAU	T Méca. théorique des fluides
	ZAMANSKY	T Mathématiques générales		ROUBINE	T Electronique
	LENNUIER	T Physique MGP		SILBER	T Chimie PCB
	RIZET	T Génétique Orsay		UEBERSFELD	T Electronique
	ROUTHIER	T Géologie appliquée		YVON	T Théories physiques
Mme	TONNELAT	T Physique théorique		HERVE	T Mathématiques
	DOUMIER	T Mathématiques MPC	Mme	NERON	T Math. MPC (Orsay)
	SOUCRAY	T Chimie générale		PECKER WIMEL	T Astrophysique
	AGRAIN	T Electrotechnique générale		BALKANSKY	T Physique MPC
	BRUSSET	T Chimie systématique		LE CORRE	T Electricité
	LEVY M.	T Physique théorique des hautes énergies (Orsay)		DELROUX	T Physique théorique (Orsay)
Mme	CHAIK	T Chimie biologique		GOUDIN	T Physique théorique des hautes énergies (Orsay)
Mme	HUREL PY	T Biologie végétale PCB		LEHMANN	T Phys. Exp. des hautes énergies
	PANNETIER	T Chimie générale		NATAP	T Physique nucléaire et radioactivité (Orsay)
	BRUN	T Mécanique des fluides I		ECHALIER	T Biologie animale PCB
	LEDERER	T Chimie biologique (Orsay)		BARRAUD	T Physiologie cellulaire
Mme	DUBREIL	T Mathématiques (agrég.)		LORIOT	T Physiologie végétale (Orsay)
Mme	LELONG	T Mathématiques II ENS		DARS	T Géologie structurale et Géologie appliquée
	BELLAIR	T Géologie SPNC		CAMPEFORT	T Botanique (agrégation)
	COTTE	T Physique électrochimie		VICHNEVSKY	T Mécanique industrielle
	DUBOIS J.E.	T Chimie organique		BLAQUIERE	T Electronique (Orsay)
	LAMOTTE	T Zoologie ENS		ARNOUS	T Physique théorique
	MICHEL A.	T Chimie minérale Orsay		TATIBOUT	T Chimie (CSU Orléans)
	OLMER	T Energétique générale		MALLIAVIN	T Mathématiques prop. (Orsay)
	ROUAULT	T Electricité (Orsay)		GAUDEMAR	T Chimie prop.
	GAUTHIER	T Chimie physique		PEREZ Y JORBA	T Physique Exp. des hautes énergies (Orsay)
	BACHEWITZ	T Chimie atomique		DAVID	T Chimie (agrégation Orsay)
	BROSSEL	T Physiologie comparée		BROUSSE	T Mécanique théorique
	BUSER	T Physiologie végétale		ROSCHE	T Astronomie
	CAMUS	T Physique II Thermo (Orsay)		GUY	T Physique expérimentale
	CASTAING	T Minéral & cristallog.		LAZARD	T Math. MPC
	CURIEN	T Physique végétale (Orsay)		MOREL P.	T Physique MPC
Mme	MOYSE	T Evolution des êtres organisés		ARSAC	T Programmation
	CHARNIAUX-	T Zoologie		LEFEBVRE	T Chimie MPC
	COTTON	T Chimie quantique		CHAPEVILLE	T Biochimie
	POSSOMPE	T Physique Nucl. & radioactivité (Orsay)		BENOIT	T Physique CPEM
	PULLMANN	T Biol. Physico-chim. (Orsay)		RIO	T Chimie CPEM
	TEILLAC	T Econométrie		JAUZEIN	T Géologie ENS
	TONNELAT	T Chimie PCB		PREVOST G.	T BV CPEM
	VILLE	T Chimie (Orsay)		FAVARD P.	T BA CPEM
	WILLEMART	T Recherches physiques		VILKAS	T Chimie CPEM
	DODE	T Biologie végétale SPNC (Orsay)	Mlle	PICMI	T Chimie CPEM
	FREYMANN	T Chimie minérale		LEQUEUX	T Astronomie
	GUINOCHE	T Chimie SPNC		COHEN TANNOUNJI	T Physique MPC
	ROLLET	T Géométrie algéb. et théorie des groupes		TAVERNIER	T Physique CPEM
Mlle	JOSIEN	T Electronique Orsay	Mme	ROZEN	T Physique CPEM
	CHEVALLEY	T Physique I (Orsay)		DURAND M.	T BA SPNC
	ARNOULT	T Mathématiques I (Orsay)		PASCAUD	T Physiologie
	CHAPPELLE	T Mathématiques générales (Orsay)	Mme	PETIT	T BA CPEN
	DELANGE	T Mécanique théorique des fluides		BROUSSE	T Géologie (Orsay)
	DENY	T Mécanique des fluides		CAGNIAC	T Physique agrégation (Orsay)
	GERMAIN	T Géologie		LEBERIE	T Zoologie (Orsay)
	LUCAS	T Chimie physique		SCHEFFER	T Microbiologie (Orsay)
	ALLARD	T Physique des particules fondamentales (Orsay)		DE GENNES	T Physique des solides (Orsay)
	BERTHELOT	T Météor. et physique de l'atmosphère		RIOU	T Physique nucléaires exp. (Orsay)
	RICARD	T Psycho-physio.		CLAUSER	T Chimie biologique (Orsay)
Mme	ALME PESSARD	T Physique des solides (Orsay)		CHEVALIER	T Physiologie animale (Orsay)
	FRIEDEL	T Etudes des molécules complexes		JANOVICI	T Physique atomique (Orsay)
	JULIA M.	T Biologie animale SPNC (Orsay)		FALK-VAIRANT	T Physique nucléaire (Orsay)
	LENDER			FETIZON	T Chimie prop. (Orsay)
				CERF	T Mathématiques (Orsay)

Secrétaire général... R. POULAIN

A Monsieur Ali-Asghar AZAD

Professeur à la Faculté des Sciences
de TEHERAN, Directeur du Centre
d'Etudes Nucléaires de l'Université
de TEHERAN

en témoignage de ma profonde gratitude

A Monsieur le Professeur Mahmoud HESSABI

Doyen Honoraire de la Faculté des Sciences
de TEHERAN

avec mon très respectueux dévouement

AVANT-PROPOS

Je tiens tout d'abord à exprimer ma gratitude au Gouvernement Français, et particulièrement au Commissariat à l'Energie Atomique qui m'a donné la possibilité d'entreprendre ces études dans ses laboratoires.

J'exprime ma profonde reconnaissance à Monsieur le Professeur Etienne VASSY, pour l'honneur qu'il m'a fait en acceptant de présider le jury d'examen et pour l'intérêt qu'il a porté à ce travail.

Ce m'est un devoir agréable de remercier Monsieur le Professeur Marc LEFORT qui a bien voulu patronner mon travail et pour les conseils précieux qu'il m'a donnés.

Cette thèse résulte entièrement de mes recherches effectuées au Centre d'Etudes Nucléaires de SACLAY dans le Service d'Electronique Physique, où j'ai bénéficié d'excellentes conditions de travail. Que Monsieur Jacques LABEYRIE, Chef de ce service trouve ici l'expression de ma respectueuse reconnaissance et de mon entier dévouement pour m'avoir suggéré les idées principales de ce travail et pour les conseils et les critiques avisées qu'il n'a cessé de me prodiguer.

J'adresse mes remerciements les plus vifs à Monsieur Gérard LAMBERT, qui a bien voulu participer à ce jury et qui, lors de la réalisation de ce travail, m'a constamment guidé et m'a fait bénéficier de ses conseils avertis.

Qu'il me soit permis d'exprimer ma reconnaissance toute particulière envers une personne estimée de tous, Mademoiselle Claude LALOU, dont l'aide permanente et précieuse fut pour moi une source d'encouragement.

La première partie de ce travail a été effectuée en collaboration avec Monsieur Georges ROUX, à la Section d'Etudes des Appareils d'Electronique Physique, dirigée par Monsieur André BLANC ; qu'ils veuillent bien trouver ici l'expression de mes vifs remerciements.

Je ne veux pas oublier Madame EICHNER, qui s'est aimablement chargée pour moi de toutes les demandes administratives depuis mon arrivée en FRANCE, son action a grandement facilité ma tâche.

J'ai trouvé une très grande sympathie auprès de tous mes collègues du Centre des Faibles Radioactivités de GIF-SUR-YVETTE. Je désire les en remercier tous et en particulier Messieurs Daniel NORDEMANN et Isao MABUCHI, qui ont consacré de longs instants à de fructueuses discussions, Monsieur Tovy GRJEBINE qui m'a aimablement aidé pour la deuxième thèse, Monsieur Yuji YOKOYAMA qui m'a donné de précieux conseils, Mademoiselle Bénédicte ARDOUIN, dont l'obligeance n'a jamais été mise en défaut malgré mon insistance, enfin le secrétariat de Monsieur LABEYRIE, et en particulier Madame KNODLER, qui a toujours su résoudre mes problèmes administratifs et a assuré la présentation matérielle de ce travail.

TABLE DES MATIÈRES

	Pages
AVANT-PROPOS	5
INTRODUCTION GENERALE	9
PREMIERE PARTIE	
SPECTROMETRIE ALPHA PAR DETECTEUR A SEMI-CONDUCTEUR	
CHAPITRE I - Description et caractéristiques d'une installation de spectrométrie alpha par détecteurs à semi-conducteurs	13
I. Le détecteur	13
II. Description et caractéristiques du spectromètre utilisé	19
CHAPITRE II - Spectrométrie alpha	27
I. Catalogue de spectres alpha	27
II. Exemple particulier : spectre alpha direct du radon 222 et de son dépôt actif à vie courte	31
DEUXIEME PARTIE	
APPLICATION DES MESURES DE SPECTROMETRIE ALPHA A L'ETUDE DU COMPORTEMENT GEOPHYSIQUE DU PLOMB 210 ET DU POLONIUM 210	
CHAPITRE III - Introduction	49
I. Intérêt de l'étude	49
II. Origine du plomb 210 dans l'atmosphère	50
III. Principales étapes de notre travail	50
CHAPITRE IV - Méthodes de séparations chimiques	53
I. Principe des diverses méthodes	53
II. Nouvelle méthode d'extraction du polonium 210	54
CHAPITRE V - Concentration du plomb et du polonium 210 dans l'eau de pluie - Appli- cation à l'estimation du taux de nettoyage des aérosols dans la tropo- sphère	57
I. Méthodes de prélèvements et résultats des mesures sur l'eau de pluie	57

	Pages
II. Interprétation des résultats	57
III. Etude du nettoyage des aérosols de radium D-E et F par les précipitations...	59
CHAPITRE VI - Retombée sèche de plomb 210	63
I. Intérêt de l'étude des retombées sèches de plomb 210	63
II. Collection des retombées sèches	64
III. Résultats des mesures	67
IV. Conclusions	69
CHAPITRE VII - Chronologie isotopique de la glace antarctique par la méthode du plomb 210 - Corrélation entre le dépôt de plomb 210 dans l'antarctique et l'activité solaire	71
I. Introduction	71
II. Mesure du taux d'accumulation de la neige au bord du continent antarctique....	72
III. Corrélations entre le dépôt de plomb 210 dans l'Antarctique et l'activité solaire	78
CHAPITRE VIII - Comportement et bilan du plomb 210 atmosphérique	83
CONCLUSIONS	89
BIBLIOGRAPHIE	92

INTRODUCTION

Depuis quelques années, l'utilisation des semi-conducteurs a permis de réaliser de nouveaux types de détecteurs de radiations nucléaires. En particulier, on a pu réaliser des spectromètres α à hautes performances (résolution, sensibilité, bruit de fond).

La haute résolution d'un compteur α à semi-conducteur permet de déterminer séparément les énergies et le flux de différents groupes de particules α ayant des énergies très voisines.

Cette installation présente d'autre part une meilleure stabilité que les installations à ionisation gazeuse ou à scintillation et un très faible mouvement propre, ce qui est très important lorsqu'on a à faire des mesures de longue durée sur des sources présentant des activités très faibles.

Au cours de ce travail nous profiterons successivement de ces deux propriétés.

Dans la première partie, nous décrivons d'abord brièvement les caractéristiques de l'installation de spectrométrie α à semi-conducteur que nous avons utilisée (chapitre I) ; ensuite, nous donnons un recueil de spectres α . Nous présentons entre autres le spectre α direct du radon 222 et de son dépôt actif à vie courte (chapitre II).

La deuxième partie sera consacrée à la mesure des traces de plomb 210 naturel dans l'atmosphère par l'intermédiaire de son descendant le polonium 210 émetteur α . Cette méthode présente l'avantage d'une grande sensibilité, en effet, le plomb 210 avait déjà été mesuré par l'intermédiaire de son premier descendant le bismuth 210 émetteur β , mais le mouvement propre relativement élevé des compteurs β ne permet pas les mesures précises de très faibles quantités de plomb 210.

Avec le compteur α à semi-conducteur que nous avons utilisé, on arrive à mesurer des activités en polonium 210 de l'ordre de 0,02 dpm (10^{-14} ci).

Nous avons appliqué cette méthode à l'étude du comportement général de plomb 210 dans l'atmosphère.

Des mesures dans l'eau de pluie et les glaces de l'Antarctique nous ont permis, grâce à leur grande précision, d'apporter une contribution à la connaissance de la répartition du plomb 210 dans l'atmosphère et à celle des taux d'accumulation de neige en Terre Adélie au cours des dernières décennies.

PREMIÈRE PARTIE

**SPECTROMÉTRIE ALPHA PAR DÉTECTEUR
A SEMI-CONDUCTEUR**

CHAPITRE I

DESCRIPTION ET CARACTÉRISTIQUES D'UNE INSTALLATION DE SPECTROMÉTRIE α PAR DÉTECTEUR A SEMI-CONDUCTEUR

Une installation de spectrométrie α à semi-conducteur se compose de deux parties :

- un détecteur qui transforme l'énergie des particules incidentes en impulsions électriques,
- un dispositif électronique qui amplifie ces impulsions et analyse leur amplitude.

I - LE DETECTEUR

a) Description générale d'un détecteur à semi-conducteur

Un détecteur à semi-conducteur est généralement constitué par une plaquette de silicium ou de germanium, sur une face de laquelle est créée une zone à haute concentration d'impuretés P ou N.

Une jonction semi-conductrice est ainsi créée dont les caractéristiques électriques et physiques ont été étudiées et déterminées par de nombreux auteurs (SHOCKLEY et READ, 1952 ; SPENKE, 1959 ; MAYER, 1960 ; Mc KENZIE et WAUGH, 1960 ; DEARNALEY et NORTHROP, 1963 ; FRIEDLAND et al. 1960).

Au point de vue de la détection d'une particule nucléaire, le détecteur à semi-conducteur peut être schématisé comme le montre la figure 1-1. La plaquette de semi-conducteur a une résistivité ρ élevée, de type N par exemple, et une couche, la moins épaisse possible, à forte concentration d'impuretés de type P, existe sur une des faces, l'autre face est rendue conductrice par un fort "dopage" en impuretés N. Quand la jonction est polarisée en inverse par une tension extérieure, on obtient une zone de charge d'espace de profondeur D, pratiquement vidée de porteurs de charges électriques et dans laquelle règne un champ électrique important E.

Le détecteur est aussi un condensateur plan dont le diélectrique serait la région du semi-conducteur où règne la charge d'espace et dont la distance entre les "plateaux" serait égale à D. Sa capacité est

$$C = 3,32 \cdot 10^4 (\rho_p V_i)^{1/2} \text{ pF/cm}^2.$$

où ρ_p = résistivité du silicium de type P,
 V_i = potentiel inverse de polarisation.

Un tel détecteur est traversé par un courant générateur de bruit qui croît avec la tension de polarisation inverse.

b) Détection d'une particule nucléaire chargée

Lorsqu'une particule ionisante pénètre dans le détecteur, elle y forme des électrons libres et des trous positifs et l'ionisation qui en résulte est analogue à celle que produirait cette particule dans le gaz d'une chambre d'ionisation.

L'énergie nécessaire pour créer une paire électron-trou est de 2,94 électron-volts pour le germanium et de 3,50 électron-volts pour le silicium (DEARNALEY et NORTHROP, 1963 ; KOCH, 1963) ; elle est bien inférieure à celle nécessaire dans un gaz (une trentaine d'électron-volts en moyenne).

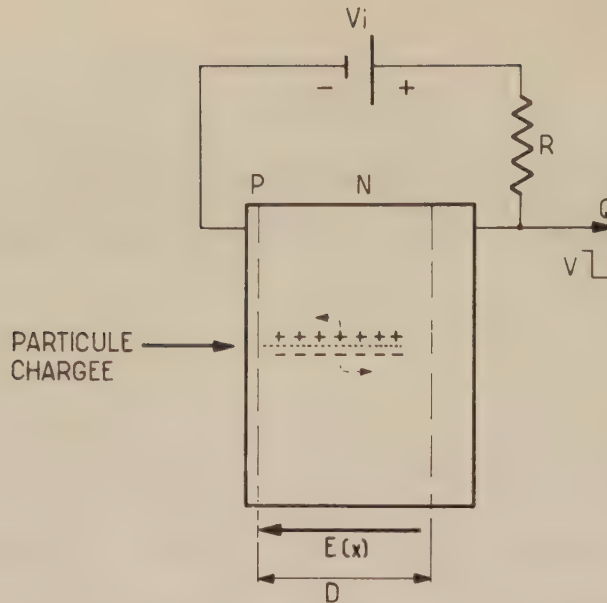


Fig. 1.1. Principe de la détection par semi-conducteur.

A énergie égale, on a donc dans un semi-conducteur environ 10 fois plus de charges créées que dans un gaz, la précision de mesure d'énergie est donc théoriquement $\sqrt{10} = 3,2$ fois meilleure.

Sous l'action du champ électrique de quelques dizaines de milliers de volts/cm qui règne dans la zone de charge d'espace, les charges produites sont collectées en un temps très bref. Il en résulte (fig. 1-1) une impulsion de tension dans le circuit associé.

Le volume sensible de détecteur est limité à la zone de charge d'espace d'épaisseur D , les vitesses des porteurs de charge dans cette zone sont :

$$V_p = \frac{dx}{dt} = \mu_p E \quad \text{pour les trous}$$

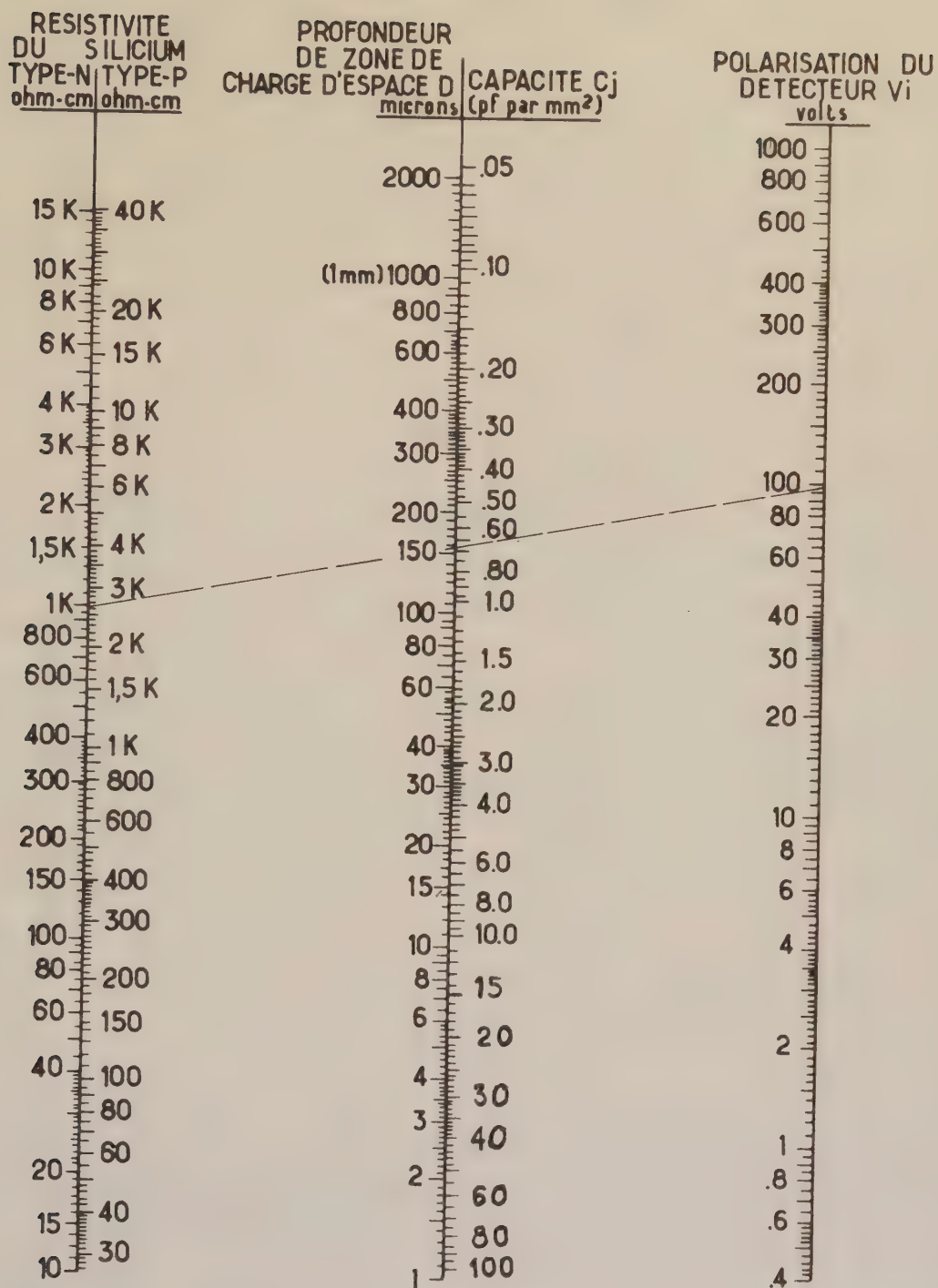
$$V_e = \frac{dx}{dt} = \mu_e E \quad \text{pour les électrons}$$

où μ_p et μ_e sont, respectivement, les mobilités des trous et des électrons et E la valeur du champ électrique.

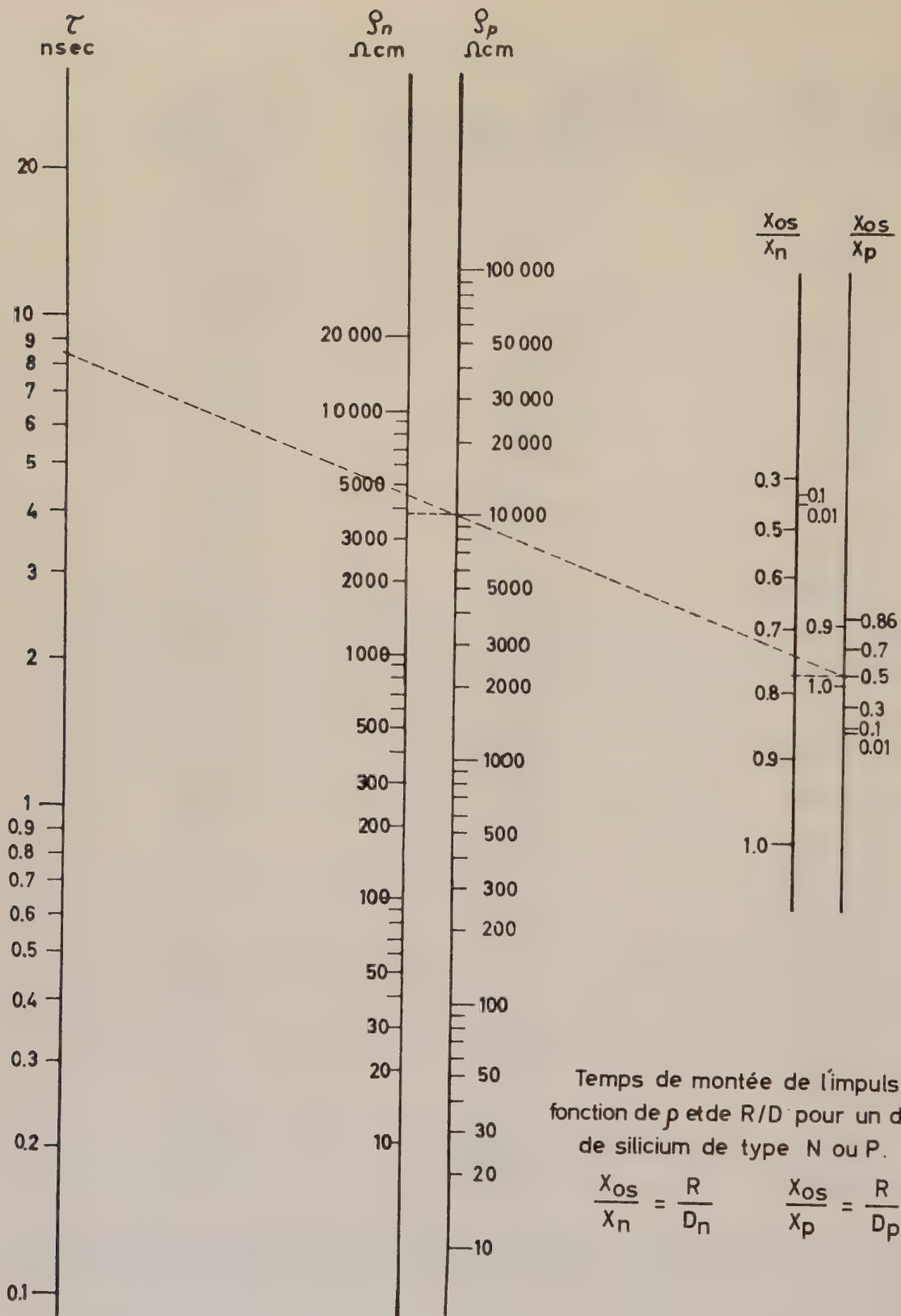
Le temps de collection qui correspond au temps de montée (τ_n) de l'impulsion électrique récoltée sur l'une des faces a été calculé par P.A. TOVE et K. FALK (1961) ; ce temps dépend : des mobilités des porteurs, de la résistivité ρ du semi-conducteur utilisé en enfin du rapport R/D du parcours de la particule à la longueur de la zone de charge d'espace. Le monogramme 2, issu de leur calcul permet de déterminer le temps de montée de l'impulsion selon le type N ou P du détecteur pour différentes valeurs de ρ et R/D . Pour un silicium de type P, τ_n est minimum pour $\frac{R}{D\rho} = 0,86$.

Le temps de collection (de l'ordre de quelques nano-secondes) est très court devant la durée de vie de porteurs libres (de l'ordre de 10^{-3} secondes dans les meilleurs cristaux et de l'ordre de 10^{-7} dans les plus mauvais) ; les paires électron-trou n'auront donc pas le temps de se recombiner entre elles, et on les collectera en quasi totalité.

Par contre, dans les zones équipotentielles situées de part et d'autre de la région de charge d'espace les phénomènes sont différents. Le champ électrique étant nul dans ces régions, les paires électron-trou créées subissent un mouvement de diffusion relativement lent. Au cours de ce mouvement, des paires électron-trou auront le temps de se recombiner. Dans la zone à haute concentration P (fig. 1-1), en particulier, la brève durée de vie des électrons et des trous (inférieure à 10^{-6} seconde) leur laisse peu de chance de parvenir dans le détecteur proprement dit. Finalement



Monogramme 1 - Zone de charge d'espace et capacité d'une jonction en fonction de la résistivité du silicium et de la polarisation du détecteur. Similaire au monogramme précédemment publié par J.L. Blankenship I.R.E. Trans., Vol. NS 7 - Nos 2-3, pp. 190-195, June 1960.



Monogramme 2 - (d'après Tove et Falk).

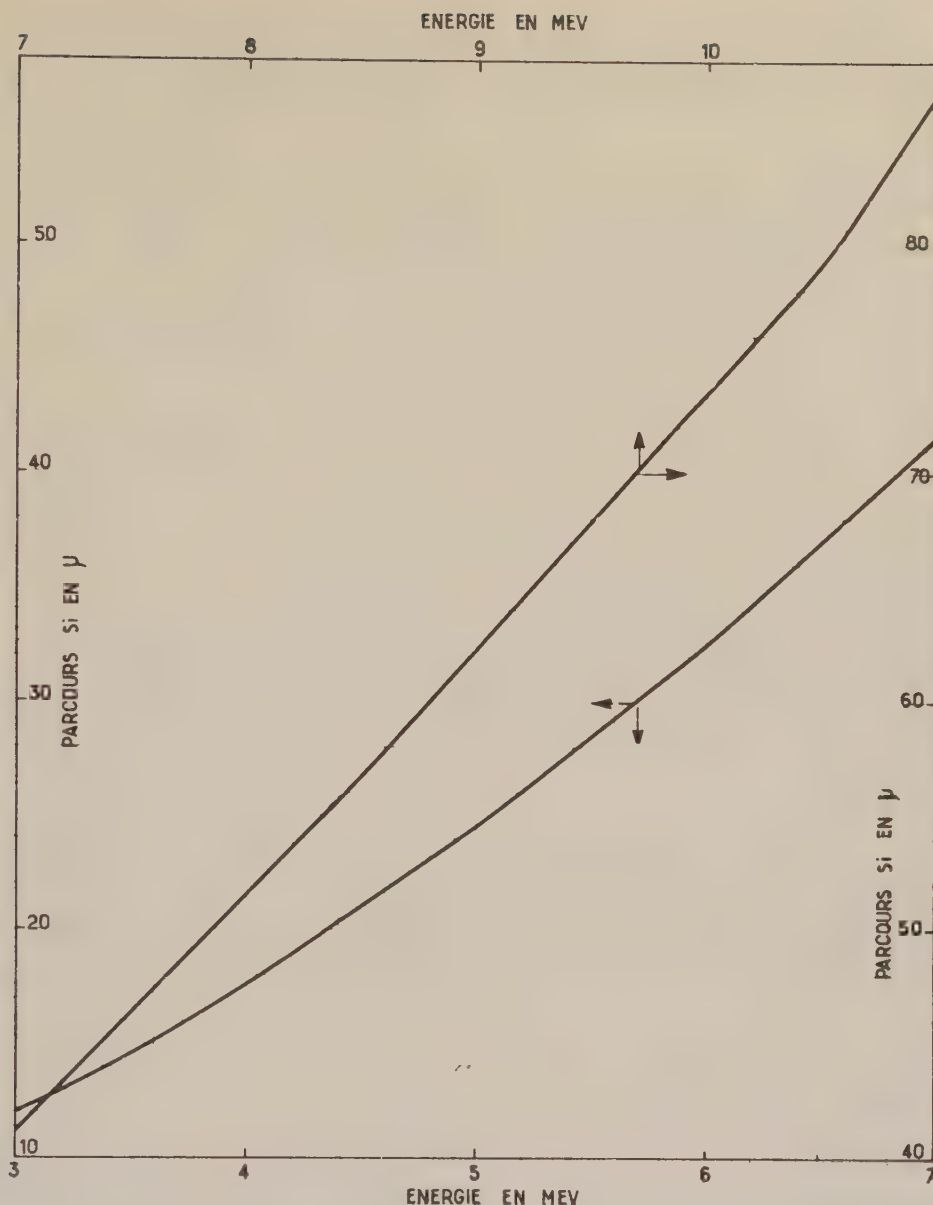


Fig. 1.2. Relation parcours energie pour les particules α dans le silicium.

la perte d'énergie subie par les particules de cette zone varie avec l'angle d'incidence des particules, l'épaisseur de la zone, ce qui introduit des fluctuations dans l'énergie mesurée. Il faut donc que l'épaisseur de cette zone soit aussi faible que possible. Les couches diffusées ont habituellement une épaisseur de un à deux microns et elles n'excèdent pas $0,1 \mu$ soit $0,023 \text{ mg/cm}^2$ pour le silicium dans les meilleurs détecteurs réalisés, ce qui représente une fraction de parcours des rayons α ne dépassant pas 1 % environ de ce parcours.

Le parcours de la particule α ne doit pas être supérieur à D ; on sait que l'ionisation spécifique de cette particule est maximale vers la fin de son parcours et si une ionisation importante avait lieu au delà de la zone sensible, une partie importante des porteurs de charge ne participerait pas à l'impulsion. La réponse restera donc linéaire pour des énergies d'autant plus grandes que D sera plus grand.

Les énergies des particules α des émetteurs radioactifs naturels se trouvent toujours entre 4 et 10 MeV. Le parcours de telles particules dans le silicium est compris entre $3,8 \text{ mg/cm}^2$ soit 16μ et 17 mg/cm^2 soit 74μ ce qui en permet la détection par détecteur à semi-conducteur très mince, relativement facile à fabriquer.

c) Grandeurs pratiques concernant les détecteurs à semi-conducteurs

Le tableau I donne les propriétés physiques du silicium et du germanium ainsi que les coefficients numériques pour les détecteurs au silicium.

Le monogramme 1 similaire de celui de BLANKENSHIP, (1960) - DEARNALEY et coll., (1963) donne la profondeur de la zone de charge d'espace et la capacité des détecteurs au silicium en fonction de la résistivité et de la polarisation appliquée.

Le monogramme 2 permet de déterminer le temps de montée de l'impulsion selon le type N ou P du détecteur pour différentes valeurs de la résistivité et du rapport, R/D, du parcours de la particule à la longueur de la zone de charge d'espace.

La courbe de la figure 1-2 donne la relation parcours-énergie des particules α dans le silicium.

Tableau I

Propriétés physiques du silicium et du germanium

Détail	Silicium	Germanium
Table périodique	Groupe IV b	Groupe IV b
Numéro atomique	14	32
Masse atomique	28,09	72,60
Masse atomique des isotopes stables	28 - 29 - 30	70 - 72 - 73 - 74 - 76
Structure cristalline	Cubique à face centrée (type diamant)	Cubique à face centrée (type diamant)
Réseau cristallin	5,42 Å	5,657 Å
Nombre d'atomes par cm ³	4,96 × 10 ²²	4,41 × 10 ²²
Densité	2,33 g/cm ³	5,33 g/cm ³
Point de fusion	1 420°C	936°C
Point d'ébullition	2 600°C	2 825°C
Coefficient de dilatation thermique (linéaire)	4,2 × 10 ⁻⁶ /°C	6,1 × 10 ⁻⁶ /°C
Conductibilité thermique	0,20 cal/cm/sec/°C	0,14 cal/cm/sec/°C
Chaleur spécifique (0° - 100°C)	0,181 cal/g/°C	0,074 cal/g/°C
Constante diélectrique	12	16
Indice de réfraction	{ 3,5 (12 000 Å) 3,4 (26 000 Å)	{ 4,14 (18 000 Å) 7,07 (26 000 Å)
Energie d'activation du cristal "gap"	1,106 eV	0,75 eV
Résistivité intrinsèque à 300°K	70 000 ohm.cm	50 ohm.cm
Densité d'inversion à 300°K	6,6.10 ¹⁰ /cm ³	2,5.10 ¹³ /cm ³
Mobilité des trous à 300°K	480 cm ² /volt.sec	1 800 cm ² /volt.sec
Mobilité des électrons à 300°K	1 800 cm ² /volt.sec	3 600 cm ² /volt.sec
Coefficient de diffusion des électrons à 300°K	35 cm ² /sec	92 cm ² /sec
Coefficient de diffusion des trous à 300°K	12,4 cm ² /sec	44 cm ² /sec

d) Différents types de détecteurs à semi-conducteur

Il existe trois types principaux de détecteurs à semi-conducteurs :

d-1 Détecteurs à jonctions

Le matériau de base est en général une plaquette de silicium P sur laquelle on forme une couche très mince de type N, par diffusion de phosphore, deux contacts chimiques sont réalisés l'un sur la zone P, l'autre sur la zone N, ce dernier est placé de telle façon qu'il ne puisse pas intercepter les particules qui pénètrent dans la zone de charge d'espace.

d-2 Détecteurs à barrière de surface

Le matériau de base est de type N ; la mince couche oxydée superficiellement rend la surface de type P. D'après BLANKENSHIP et BORKOWSKI (1961) la surface d'un cristal de silicium découpée et lavée, exposée à l'air ambiant développe des états de surface qui ont produit de bonnes diodes à barrière de surface. Le dépôt d'une mince couche d'or sur la surface, protège le détecteur et permet la soudure d'un contact.

À l'exception de la formation de la jonction, les mêmes théories et les mêmes équations qui décrivent les détecteurs à jonction, s'appliquent aux détecteurs à barrière de surface. Ces diodes ont deux avantages : les techniques de construction sont très simples et ne dégradent pas le temps de vie des porteurs minoritaires comme le font les techniques de fabrications de jonction par diffusion ; or, le courant dû aux porteurs minoritaires, d'après Mc KENZIE et WAUGH (1960), MAYER et GOSSIK (1956), est inversement proportionnel à la racine carrée de leur temps de vie ($I_1 \propto \frac{1}{\sqrt{\tau}}$), ces détecteurs ont donc un courant inverse et un bruit de fond très faible ce qui permet de réaliser des détecteurs de plusieurs centimètres carrés de surface.

La couche morte constituée par le film d'or est très faible (une fraction de micron).

d-3 Détecteurs "intrinsèques"

Un troisième type de détecteur permettant d'obtenir des zones utiles très grandes est le détecteur "intrinsèque" : le semi-conducteur de base est rendu intrinsèque par compensation de ses impuretés par les impuretés de type opposé ; c'est la technique des détecteurs au lithium ou au silicium compensé par transmutation nucléaire. Deux électrodes sont disposées sur les deux faces opposées du détecteur et c'est le champ créé par ces électrodes qui assure la séparation des charges créées par la particule chargée au sein du détecteur.

II - DESCRIPTION ET CARACTERISTIQUES DU SPECTROMETRE UTILISE

a) Description

Le spectromètre utilisé est du même type que celui étudié et réalisé par G. ROUX (1963) et le schéma général en est donné figure 1-3.

Il est essentiellement constitué :

- d'une tête de détection blindée électrostatiquement, contenant source et détecteur et dans laquelle un vide primaire peut être obtenu. Les caractéristiques du détecteur utilisé sont décrites dans le tableau II ;

- d'un préamplificateur ROUX (1961) ayant une réponse proportionnelle à la charge collectée par le détecteur. Ce préamplificateur possède une entrée "Test" permettant d'injecter sur l'entrée "détecteur" une quantité de charges calibrées simulant la détection d'une particule ;

- d'un amplificateur de gain 10 000 pour une bande passante de 2 MHz, et possédant des circuits différentiateur et intégrateur pour la mise en forme des impulsions provenant du préamplificateur. Une mise en forme des impulsions permet d'obtenir la résolution optimum compte tenu des caractéristiques de capacité et de courant du détecteur ;

- d'un amplificateur à seuil ROUX (1961) qui, intercalé entre l'amplificateur et l'analyseur d'amplitude, permet l'analyse fine des spectres en s'affranchissant des dérives possibles de l'analyseur ;

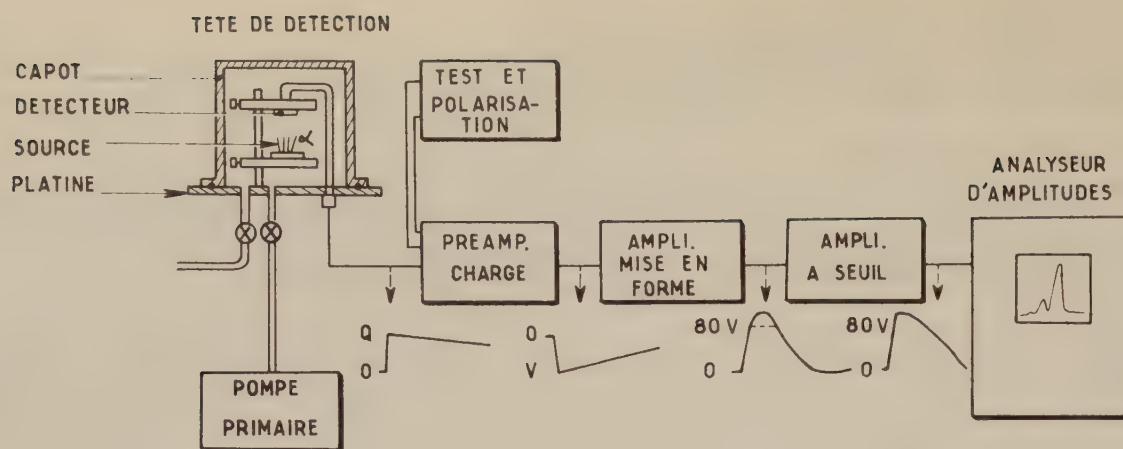


Fig. 1.3. Schéma général du spectromètre.

- d'un analyseur d'amplitude à 200 canaux, équipé de tubes ou de transistors ;
- d'une installation de vide constituée par une pompe à palette associée dans certains cas à un piège à air liquide.

Tableau II

Caractéristiques des détecteurs utilisés

Fabricant	ORTEC	CEA/SEP	CEA/SEPP
Matériau	Silicium	Silicium	Silicium
Type	Barrière de surface	Jonction	Barrière de surface
Surface utile	25-50-250 mm ²	20 mm ²	5 à 50 mm ²
Epaisseur utile maximum	410 microns	100 microns	50 à 100 microns
Epaisseur de la couche morte (ou fenêtre d'entrée)	< 20 keV	50 keV	< 20 keV
Temps de collection	non mesuré (inférieur à 10 ⁻⁸ sec).		
Elargissement moyen des raies à mi-hauteur (keV) - (Résolution en énergie) : à 5 MeV	19 keV et 40 keV suivant la surface	25 keV	20 keV
à 10 MeV		non mesuré en α	
Mouvement propre entre 3 MeV et 6 MeV	1 à 1,5 coups/heure suivant la surface	1,5 coups/h	non mesuré
Mouvement propre entre 4,5 MeV et 5,5 MeV	0,3 coups/heure pour détecteur de 250 mm ² de surface	0,5 coups/h	

b) Résolution en énergie

Les raies des spectres d'énergie α sont théoriquement extrêmement fines et tous les appareils utilisés actuellement pour obtenir ces spectres ne peuvent qu'en élargir les raies.

Dans le cas d'un spectromètre utilisant les détecteurs à semi-conducteurs, les différentes causes d'élargissement des raies sont les suivantes :

- fluctuation du nombre de charges libérées dans le détecteur ;
- bruit d'origine électronique pouvant s'interpréter comme une fluctuation du nombre de charges au niveau du détecteur ;

- variations de la perte d'énergie des particules α dans l'épaisseur de la source ainsi que dans la couche morte du détecteur ;

- dérives de l'appareillage électronique, par exemple : les fluctuations du facteur d'amplification et du seuil de la loupe. Ces deux dernières causes produisent à la fois un élargissement et un déplacement des raies.

b-1 Fluctuations du nombre de charges créées dans le détecteur

Une particule α d'énergie E libère au total un nombre de paires électron-trou égal à $N = \frac{E}{W}$, W étant l'énergie moyenne nécessaire pour produire une paire électron-trou (3,5 eV pour le silicium). L'écart type de ce nombre de charge sera $\sigma = \sqrt{N} = \sqrt{\frac{E}{W}}$, si la fluctuation obéit uniquement à la loi de Poisson.

La résolution (largeur à mi-hauteur de la raie) est alors, en nombre de charge :

$$R_N = 2,36 \sigma = 2,36 \sqrt{\frac{E}{W}}$$

et en énergie :

$$R_N = 2,36 W \sigma = 2,36 \sqrt{EW}$$

Pour une particule α de 5 MeV on a :

$$R_N = 2,36 \sqrt{3,5 \cdot 5 \cdot 10^6} \approx 10 \text{ keV.}$$

Dans le cas d'une chambre d'ionisation, on montre (FANO, 1947) que les fluctuations observées sont plus faibles que leur amplitude théorique. Les fluctuations obtenues sont les mêmes que si on avait seulement un nombre de paires d'ions égal à :

$$N_c = N \cdot F$$

où N_c est le nombre de paires d'ions corrigé, N le nombre d'ions primaires et F , appelé facteur de FANO étant inférieur à 1. La résolution correspondante est :

$$R_{Nc} = 2,36 \sqrt{F \cdot E \cdot W}.$$

Dans un détecteur à semi-conducteur on ne connaît pas bien ce facteur, mais on suppose qu'il est environ égal à un.

b-2 Bruit d'origine électronique

Les sources de bruit d'origine électronique sont variées et sont résumées dans le tableau III. Ce tableau donne l'évaluation des différentes sources de bruit ramenées au niveau du détecteur et exprimées en $(\text{keV})^2$ (d'après HANSEN et GOULDING 1961).

Les expressions figurant dans ce tableau montrent que certaines valeurs de ce bruit dépendent de la constante de temps de mise en forme. Le carré du bruit dû à l'effet de grenaille dans le premier tube est inversement proportionnel à τ , tandis que les carrés des bruits dus aux courants i_g , i_d et i_R sont directement proportionnels à cette quantité. Ainsi une constante de temps pour laquelle le bruit est minimum doit exister. Cette constante de temps s'étend d'après ROUX (1962), entre 0,3 et 3 microsecondes suivant les paramètres du détecteur.

Le bruit quadratique total est la somme quadratique des différents bruits

$$B_T^2 = B_S^2 + B_F^2 + B_G^2 + B_D^2 + B_R^2.$$

La résolution en énergie qui en résulte est :

$$R_E = 2,36 B_T.$$

Parmi ces différents bruits, le bruit de grenaille du tube d'entrée et le bruit de courant inverse du détecteur sont prépondérants : en négligeant les autres termes, l'expression de bruit se simplifie et devient :

$$B_T^2 = B_S^2 + B_D^2.$$

Pour un tube d'entrée et un détecteur donnés $B_S \times B_D$ est indépendant de la constante de temps,

le bruit total est alors minimum pour $B_s = B_D$, ce qui donne une constante de temps optimum

$$\tau_{opt} = \frac{0,35}{g_m} \frac{C}{L_D}$$

d'où un bruit minimum égal à :

$$(B_{T_{opt}})^2 = 0,11 C \sqrt{\frac{i_D}{g_m}} \text{ (unité du tableau III)}$$

Cette relation montre que le bruit minimum dépend beaucoup de la capacité totale d'entrée.

Un exemple peut être donné ici :

Si

$$g_m = 25 \text{ mA/V}$$

$$C = 100 \text{ pF}$$

$$L_D = 100 \text{ nA}$$

$$\tau_{opt} = \frac{0,35 \cdot 100}{\sqrt{25 \cdot 100}} = 0,7 \text{ } \mu\text{S}$$

$$B_T^2 = 0,11 \cdot 100 \sqrt{\frac{100}{25}} = 22 \text{ keV}^2.$$

$$\text{Résolution optimum} = 2,36 \times \sqrt{22} = 11 \text{ keV}.$$

Nous avons vu au début du chapitre que le courant du détecteur croît avec la tension de polarisation, tandis que la capacité du détecteur décroît avec cette quantité. Il est donc nécessaire de trouver une valeur optimum de tension inverse à appliquer. GOULDING et HANSEN (1961) ont trouvé cette valeur et ont donné l'expression suivante :

$$V_{opt} = \frac{10^9}{\rho} \frac{A^2}{C_e^2}$$

dans le cas où le courant du détecteur est rigoureusement proportionnel à l'expression $(\rho V)^{1/2}$ et la capacité du détecteur inversement proportionnelle à cette expression, et où A = surface du détecteur en cm^2 , C_e = capacité totale d'entrée.

Tableau III

Source de bruit	Valeur en (coulomb) ²	Valeur en (keV) ²
Bruit de grenaille	$4 \cdot 10^{-35} \frac{C^2}{g_m \tau}$	$B_s^2 = 2 \cdot 10^{-2} \frac{C^2}{g_m \tau}$
Bruit de scintillation	$4 \cdot 10^{-37} C^2$	$B_p^2 = 2 \cdot 10^{-4} C^2$
Bruit de courant grille	$3,2 \cdot 10^{-34} i_g \tau$	$B_g^2 = 1,6 \cdot 10^{-1} i_g \tau$
Bruit de courant de détecteur	$3,2 \cdot 10^{-34} i_D \tau$	$B_D^2 = 1,6 \cdot 10^{-1} i_D \tau$
Bruit de la résistance d'entrée	$1,6 \cdot 10^{-32} \frac{\tau}{R}$	$B_R^2 = 8 \frac{\tau}{R}$

Symboles :

C capacité totale d'entrée (en PF)

i_g courant de grille du premier tube (en nA)

g_m pente de la première lampe (en mA/V)

R résistance totale d'entrée (avec $RC \gg \tau$)

i_D courant inverse du détecteur (en nA)

τ constante de temps commune d'intégration et différentiation qui définit la bande passante du système amplificateur (microsecondes).

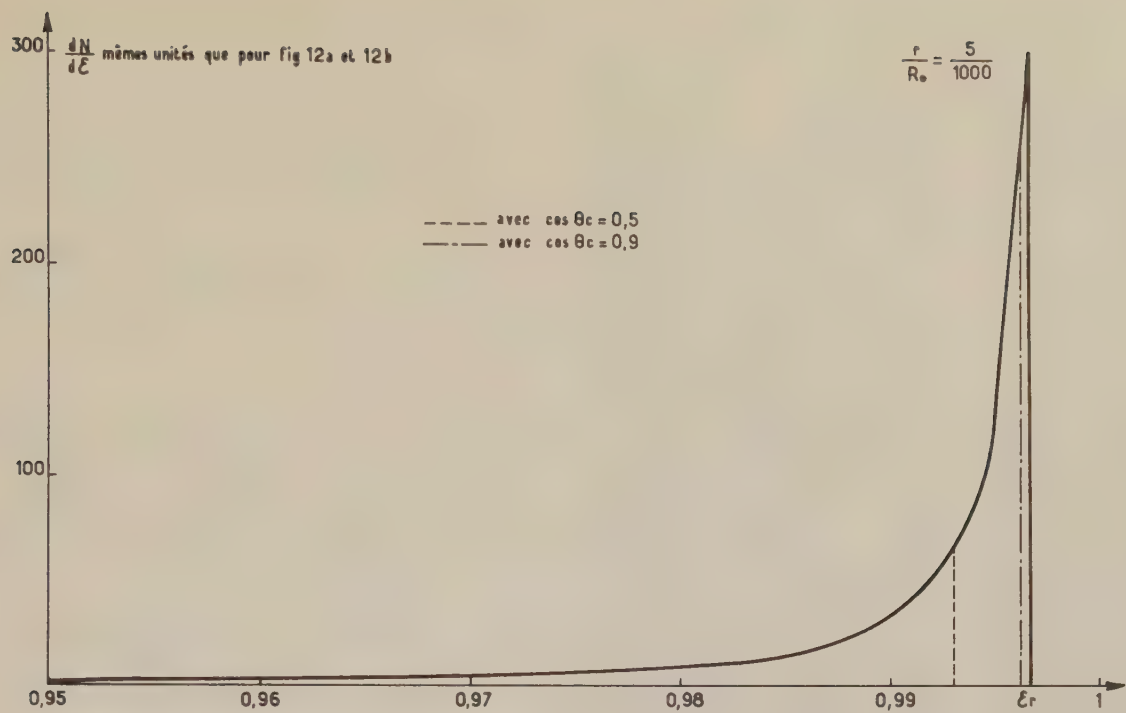


Fig. 1.4. Spectre du α à la couche morte du détecteur sans straggling pour $\frac{r}{R_0} = \frac{5}{1000}$.

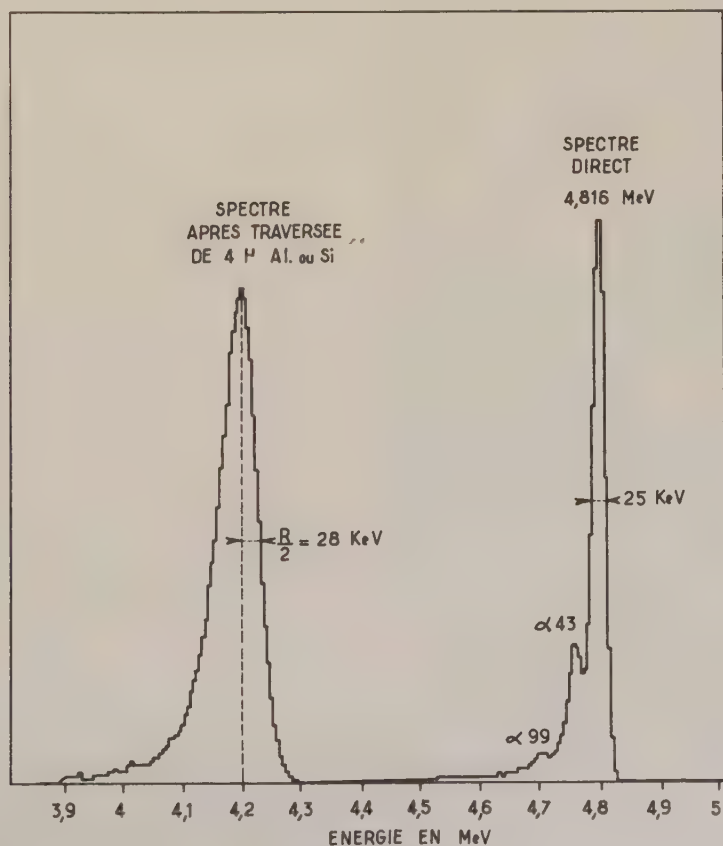


Fig. 1.5. Influence d'une couche morte sur un spectre pour un faisceau de particules α parallèle.

b-3 Variation de la perte d'énergie des particules α dans l'épaisseur de la source et dans la couche morte du détecteur

- Influence de la couche morte du détecteur :

G. ROUX (1963) a étudié théoriquement et pratiquement cette influence et les résultats essentiels sont montrés sur les courbes des figures 1-4 et 1-5. Sur la figure 1-4 ϵ est exprimé comme l'énergie réduite définie par le rapport de l'énergie mesurée E à l'énergie E_0 de la particule α incidente.

D'après ces courbes le spectre final est déplacé, élargi et présente une queue à basse énergie. Pour la spectrométrie fine il est donc nécessaire de choisir des détecteurs ayant une couche morte la plus faible possible, et l'angle d'incidence des particules doit être limité par collimation.

- Influence de l'épaisseur de la source sur la résolution :

Les particules émergeant de la profondeur de la source ou dans de larges angles perdent une part de leur énergie dans la source elle-même, en conséquence il y a un élargissement et déplacement des raies, ainsi que création d'une queue à basse énergie. Il est donc important de connaître l'effet de l'épaisseur d'une source sur la forme du spectre d'énergie qu'elle émet. KOCHAROV et KOROLEV (1961) ont étudié cette question en détail et la figure 1-6 en montre les résultats essentiels. Avec h épaisseur de la source et R_0 parcours maximum des α dans la substance de la source et $n = 1,5$ pour les α de 5 MeV, il y a aussi déplacement et élargissement des raies ainsi que création d'une queue à basse énergie.

Pour des sources d'émetteurs radioactifs à longue vie, il faut donc accepter un compromis entre l'activité de la source et la précision de mesure.

L'effet de "straggling" dans la source étale ces deux courbes.

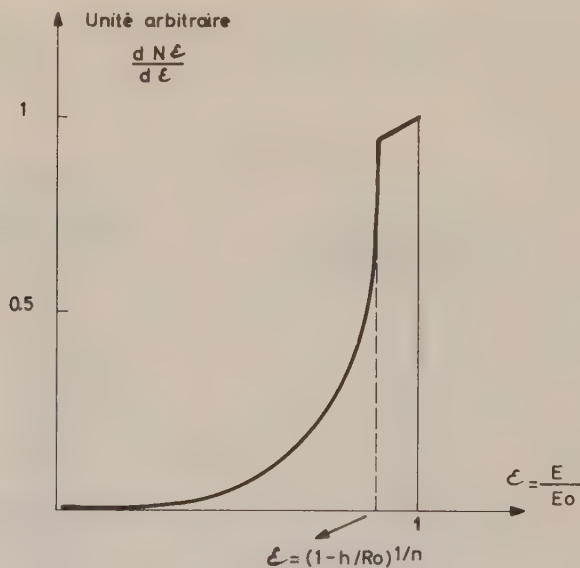
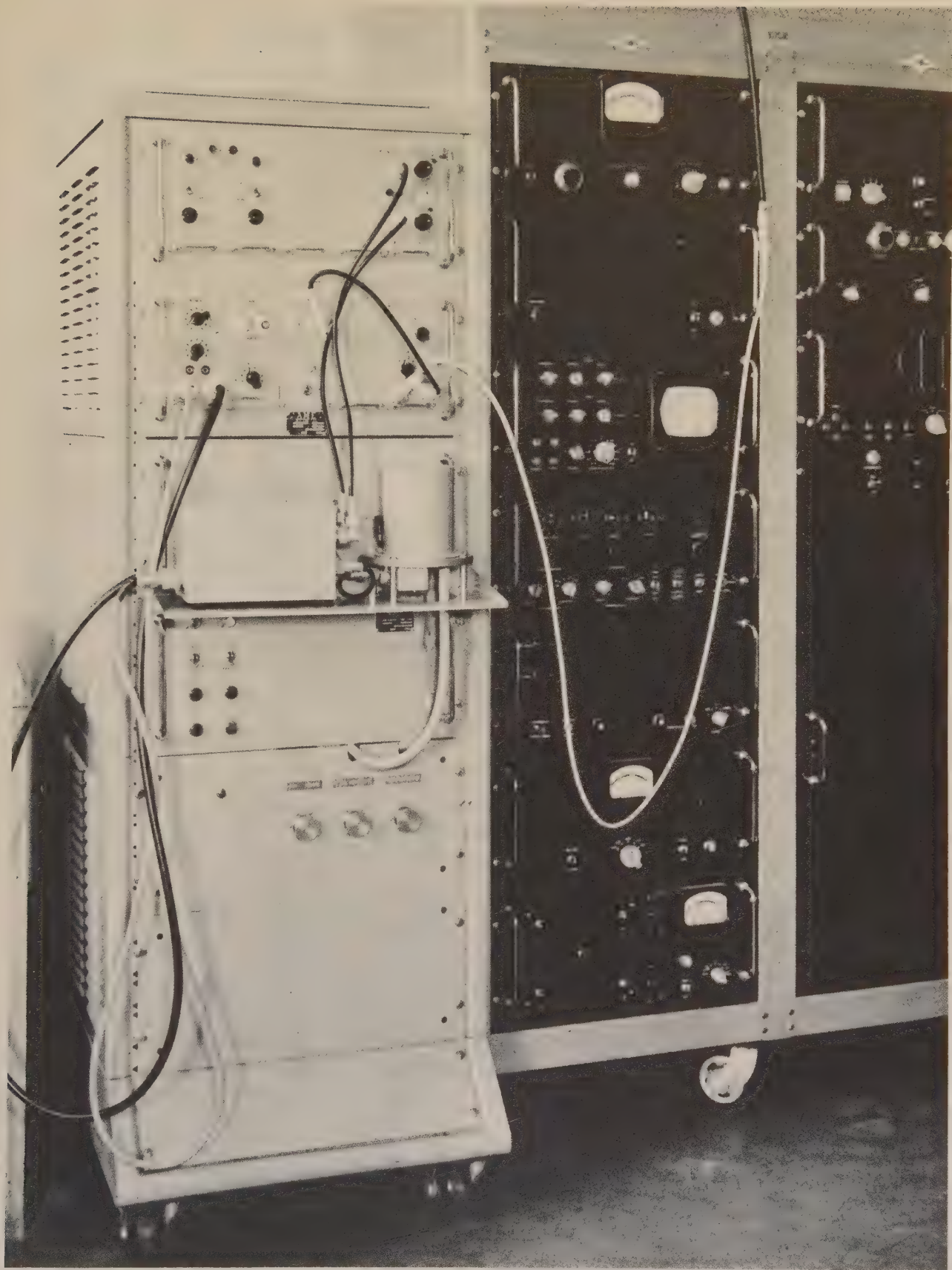


Fig. 1.6. La distribution d'énergie des particules émergeant d'une source mince.

b-4 Autres influences altérant le spectre

Il y a d'autres effets moins importants, qui altèrent les spectres ; il est donc utile de les mentionner brièvement :

Les bords du détecteur ne présentant pas une collection parfaite, il doit donc être diaphragmé. Des inhomogénéités dans la couche morte du détecteur ainsi que dans la couche active de la



Installation de spectrométrie α à semi-conducteur

source et l'adsorption d'atomes dans le support de la source, introduisent un élargissement des raies et une queue à basse énergie.

Le chevauchement des impulsions sur la fin de l'impulsion précédente donne une queue d'origine électronique. Avec des constantes de temps de mise en forme de l'ordre de 1 microseconde, il est nécessaire de limiter le taux de comptage à 5 000 coups par minute.

CHAPITRE II

SPECTROMÉTRIE α

I - CATALOGUE DE SPECTRES α

Après avoir donné des détails sur les caractéristiques et les performances auxquelles on peut s'attendre pour divers types de détecteurs à semi-conducteur et leur électronique associée, nous pouvons appliquer ces notions à l'étude de divers spectres.

Deux types de mesures sont généralement importants : la détermination de l'énergie, et la mesure de l'intensité du rayonnement.

L'installation précédemment décrite nous permet de réaliser ces deux types de mesures. En effet la résolution en énergie dans un détecteur à semi-conducteur est meilleure que celle d'une chambre à grille : 0,33 % au lieu de 1 %, pour les particules α du bismuth 212. Elle est comparable à celle d'un spectrographe magnétique, à ceci près que dans ce dernier l'angle solide utile et la surface de la source sont très petits, ce qui le rend inutilisable pour la mesure des sources α de très faible activité. Enfin, la meilleure stabilité des compteurs à semi-conducteur permet des mesures de très longue durée. Ces propriétés jointes à l'excellente linéarité entre l'amplitude du signal et l'énergie des particules α , permettent d'étudier d'une façon simple et précise le spectre de différents émetteurs α . Nous avons donc établi un recueil de ces spectres qui est présenté ici.

a) Obtention des sources

Les sources α doivent être parfaitement homogènes du point de vue cristallin. Pratiquement il est rare de trouver des sources rigoureusement spectrométriques. Les sources que nous avons utilisées sont représentatives de celles qui peuvent être obtenues dans les laboratoires d'analyses et dont les techniques de dépôt sont les suivantes :

- évaporation directe d'une solution sur un support en verre ou en métal : ceci donne rarement des sources uniformes ;
- évaporation avec mouillant et calcination : c'est par exemple la technique dite "au T.E.G." (*) elle peut donner de très bonnes sources ;
- dépôt électrolytique sur support métallique ;
- précipitation électrostatique : c'est la technique que nous avons utilisée pour le dépôt du polonium ;
- sublimation.

Les trois dernières techniques citées donnent en général d'excellents résultats mais leur mise en oeuvre est assez délicate.

b) Liste d'émetteurs α

Le tableau I donne une liste des émetteurs α naturels et de quelques émetteurs artificiels. Les raies principales α figurent avec leur pourcentage pour chaque émetteur. Les fig. 2-1 à 2-4 représentent les émetteurs α classés par séries radioactives (STROMINGER et al., 1958).

(*) Le tétra-éthylène-glycol est un solvant permettant une répartition uniforme de la source avant évaporation et calcination (pour volatiliser le T.E.G.).

Tableau I. Emetteurs naturels et quelques émetteurs α artificiels classés par éléments.

Z	El	A	Nom	Période	Energie α (MeV) et % (Raies principales)	Z	El	A	Nom	Période	Energie α (MeV) et % (Raies principales)
83	Bi	210	RaE	5,01j	4,94 (5×10^{-5} %)	90	Th	226	Th	369 mn	6,33 (79 %) 6,22 (19 %) 6,10 (1,7 %)
		211	AcC	216 mn	6,617 (8,3 %)	227	RaC	10,17j			6,083 (29 %) 5,976 (24 %) 5,755 (21 %) 5,710 (13,7 %)
		212	ThC	60,5 mn	6,086 (10 %) 6,047 (24,6 %)	228	RaTh	1910 a			5,421 (71 %) 5,330 (28 %)
		213	Bi	47 mn	5,86 (1,2 %)	229	Th	7340 a			5,02 (10 %) 4,94 (20 %) 4,85 (70 %)
		214	RaC	19,7 mn	5,505 (0,018 %) 5,444 (0,022 %)	230	Io	8×10^4 a			4,682 (76 %) 4,675 (24 %)
84	Po	210	Po	130,4 j	5,305	232	Th	$1,39 \times 10^{10}$ a			4,007 (76 %) 3,942 (24 %)
		211	AcC'	0,5 s	7,442	231	Pa	$3,43 \times 10^4$ a			5,046 (10 %) 5,017 (23 %) 5,001 (24 %) ---
		212	ThC'	$3,64 \times 10^{-3}$ s	8,78						4,938 (22 %) --- 4,722 (11 %)
		213	Po	$4,2 \times 10^{-6}$ s	8,35	92	U	238	U	20,8 j	5,884 (67,2 %) 5,813 (32,7 %)
		214	RaC'	$1,64 \times 10^{-6}$ s	7,68	232	U	74 a			5,319 (68 %) 5,261 (32 %)
		215	AcA	$1,83 \times 10^{-3}$ s	7,36	233	U	$1,62 \times 10^5$ a			4,816 (83,5 %) 4,773 (14,9 %) 4,717 (1,6 %)
		216	ThA	0,158 s	6,775	234	U II	$2,48 \times 10^5$ a			4,748 (72 %) 4,717 (28 %)
		218	RaA	3,05 mn	5,999	235	AcU	$7,1 \times 10^8$ a			4,559 (67 %) 4,520 (2,7 %) 4,370 (25 %) 4,354 (35 %)
85	At	217	At	0,018 s	7,05	236	U	$2,39 \times 10^7$ a			4,339 (14 %) 4,318 (8 %) 4,177 (5,8 %)
		219	At	0,9 mn	6,27	238	UI	$4,51 \times 10^9$ a			4,5 (73 %) 4,450 (27 %)
86	Rn	218	Rn	0,019 s	7,13	93	Np	237	Np	$2,2 \times 10^6$ a	4,872 (3,1 %) 4,816 (3,5 %) 4,767 (53 %) 4,767 (29 %)
		219	An	3,92 s	6,813 (82 %) 6,547 (13 %) 6,479 (5 %)						4,713 (1,7 %) 4,674 (3,3 %) 4,644 (6,0 %) ---
		220	Tn	51,5 s	6,282						
		222	Rn	3,823 j	5,486	94	Pu	236	Pu	2,85 a	5,763 (69 %) 5,716 (37 %) 5,610 (10,8 %)
87	Fr	221	Fr	4,8 mn	6,33 (84 %) 6,12 (16 %)	238	Pu	86,4 a			5,495 (72 %) 5,452 (28 %) 5,352 (10,9 %)
		223	AcK	22 mn	5,34 (4×10^{-3} %)	239	Pu	24,360 a			5,147 (72,5 %) 5,134 (16,8 %) 5,096 (10,7 %)
88	Ra	222	Ra	38 s	6,55	240	Pu	6,580 a			5,162 (76 %) 5,118 (24 %) 5,074 (10,7 %)
		223	AcX	11,68 j	--- 5,742 (10,5 %) 5,712 (50 %)	242	Pu	$3,79 \times 10^5$ a			4,898 (76 %) 4,858 (24 %)
		224	ThX	3,64 j	5,602 (24 %) 5,534 (10,3 %) ---	95	Am	241	Am	458 a	5,534 (10,35 %) 5,5 (10,23 %) 5,477 (85 %)
		226	Ra	1622 a	5,601 (95 %) 5,445 (4,9 %)	96	Cm	241	Cm	35 j	5,435 (12,6 %) 5,378 (1,7 %) ---
		227	Ac	21,6 a	4,94 (1,2 %)	242	Cm	162,5 j			5,95 (0,96 %)
89	Ac	225	Ac	10 j	5,818 (54 %) 5,782 (28 %) 5,721 (9,5 %) ---	244	Cm	17,9 a			6,110 (73,7 %) 6,066 (26,3 %) 5,965 (10,35 %)
		227	Ac	21,6 a	4,94 (1,2 %)	98	Cf	252	Cf	22 a	5,801 (76,7 %) 5,789 (23,3 %) 5,687 (10,17 %)
											6,112 (82 %) 6,069 (15 %)

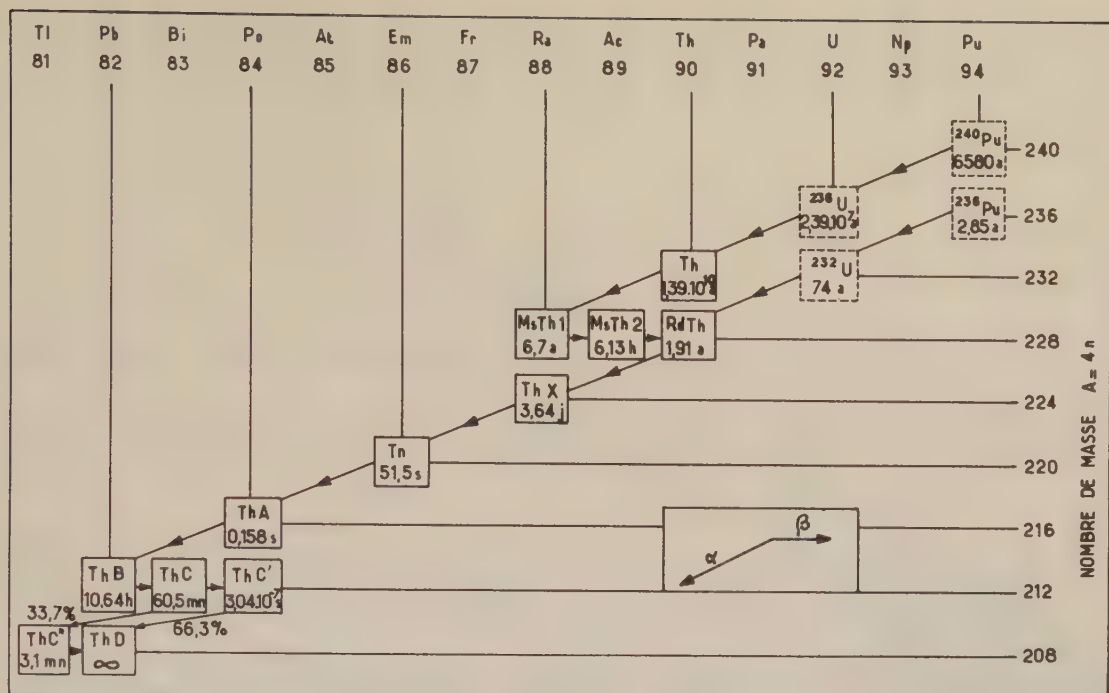


Fig. 2.1. Série du thorium : série 4n. Quelques éléments produits artificiellement sont à l'intérieur de carrés en pointillé.

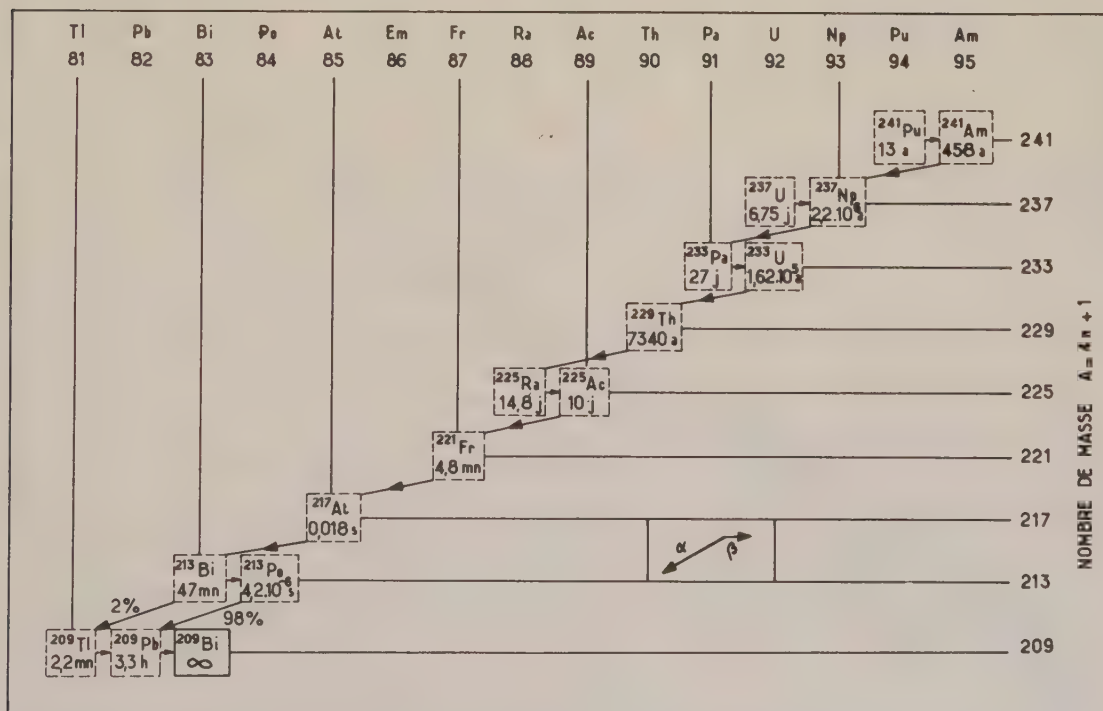


Fig. 2.2. Série du neptunium : série 4n + 1. Les éléments produits artificiellement sont à l'intérieur de carrés en pointillé.

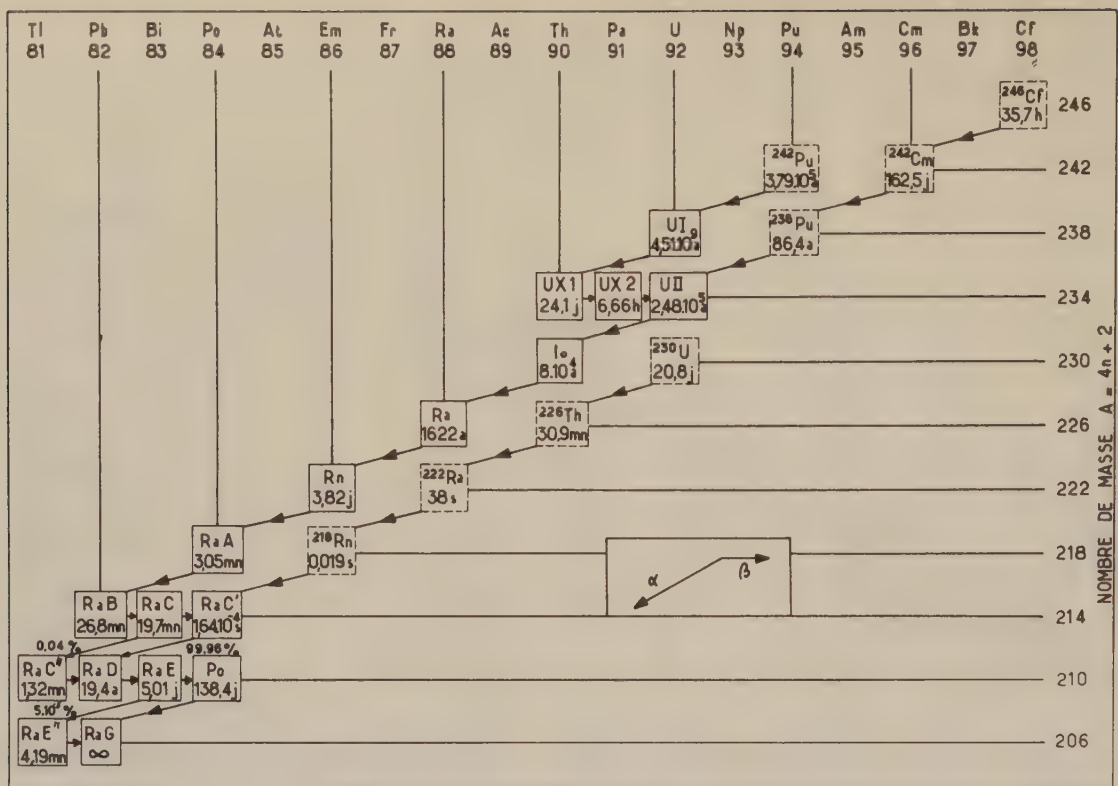


Fig. 2.3. Série de l'uranium : série $4n + 2$. Quelques éléments produits artificiellement sont à l'intérieur de carrés en pointillé.

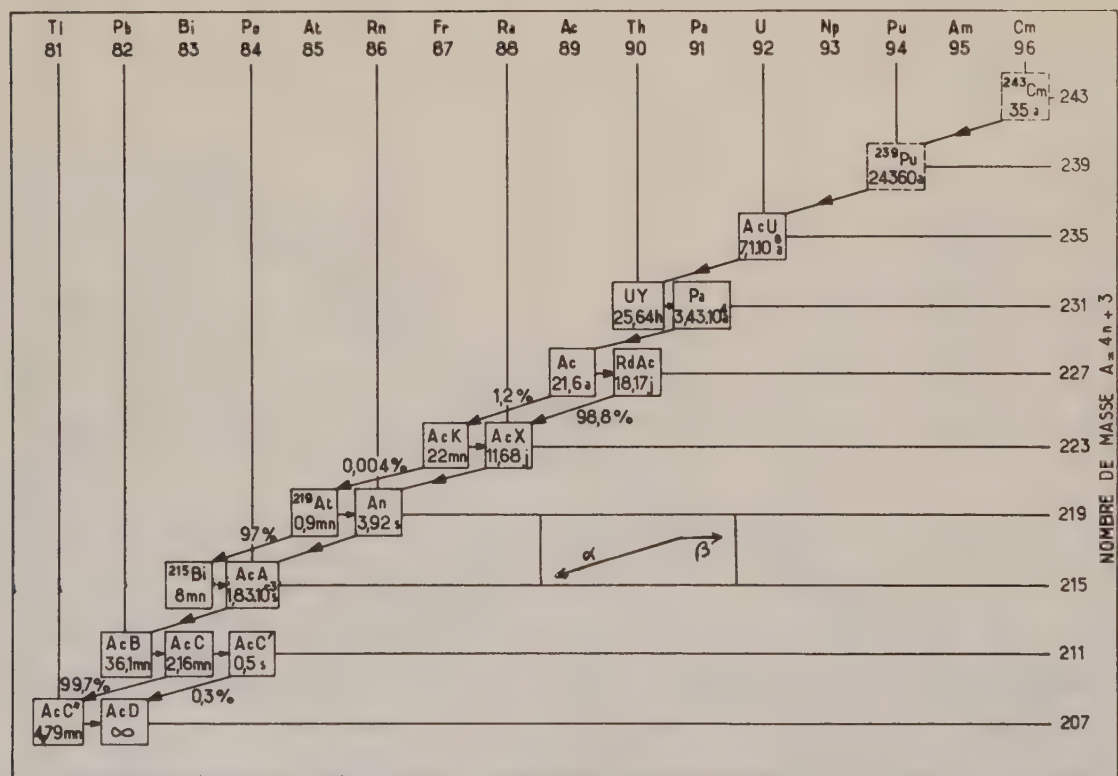


Fig. 2.4. Série de l'actinium : série $4n + 3$. Quelques éléments produits artificiellement sont à l'intérieur de carrés en pointillé.

c) Présentation des spectres

Les spectres sont donnés tels qu'ils sont couramment obtenus sur l'appareil enregistreur des analyseurs d'amplitude des impulsions.

Sur chaque spectre figurent :

- le détecteur utilisé ;
- le diamètre (ϕ) du diaphragme du détecteur ;
- la géométrie exprimée en pour cent de 4π ;
- la nature de la source et, parfois, son activité.

L'expression "détecteur Si, jonction n/p" désigne des détecteurs fabriqués par le laboratoire de Madame KOCH du Service d'Electronique Physique du Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay.

Les expressions "détecteurs Si à barrière de surface" ou "détecteur Si (B.S.)" désignent des détecteurs fabriqués par MM. SCHUTTLER et NOEL, du Service d'Etudes et de Protection des Piles du Centre d'Etudes Nucléaires de Fontenay-aux-Roses.

II - EXEMPLE PARTICULIER : SPECTRE α DIRECT DU RADON 222 ET DE SON DEPOT ACTIF A VIE COURTE

Lorsqu'on utilise comme source, une source de radium 226, par suite du dégazage spontané du radon, les particules α émises par le radium, le radon et son dépôt actif à vie courte, ne peuvent pas être vues par le détecteur avec la même géométrie ce qui empêche toute mesure quantitative. C'est pourquoi nous avons été amené à réaliser une source sur un principe totalement différent, en utilisant précisément les propriétés gazeuses du radon. Il convient de noter que lorsqu'on effectue des mesures sur le radon atmosphérique, on se trouve dans une situation qui correspond exactement à ce dernier type de mesure.

a) Principe de la méthode

On sait que le radon est fortement adsorbable par des solides variés et qu'il se piège facilement sur les parois froides (BOUISSIERE et HAISSINSKY, 1956). La méthode consiste alors à piéger le radon sur une petite surface froide située dans une enceinte à vide primaire. On doit éviter au maximum le dépôt de la vapeur d'eau qui élargirait le spectre, ou dans le cas d'une couche épaisse absorberait complètement les particules α .

Cette surface froide est réalisée par une tige en cuivre de diamètre 1 cm et de longueur 30 cm, qui traverse la platine de l'enceinte de telle façon que deux centimètres émergent au-dessus de la platine. Après avoir établi le vide, la partie qui reste à l'extérieur de l'enceinte sera plongée dans l'azote liquide.

La figure (2-5) donne un schéma général de l'installation. Le montage consiste en :

- un barboteur contenant une solution de chlorure de radium d'activité 10^8 curie ;
- un tube en U rempli d'une matière absorbant la vapeur d'eau ainsi que les gaz autres que le radon et sur laquelle nous reviendrons plus loin ;
- une enceinte à vide contenant diverses pièces et reliée à une pompe primaire établissant un vide de l'ordre de 10^{-3} mm de mercure.

Sur l'extrémité de la tige à l'intérieur de l'enceinte une pastille en or du même diamètre que la tige a été soudée. Une petite pipette est destinée à diriger le jet de radon vers le centre de cette pastille. Le radon est extrait de la solution de radium par barbotage d'un courant d'air, puis aspiré vers le reste de l'installation. Dès son arrivée dans l'enceinte ce gaz est piégé sur la surface froide qui se trouve au dessous du détecteur et qui forme alors une source de radon.

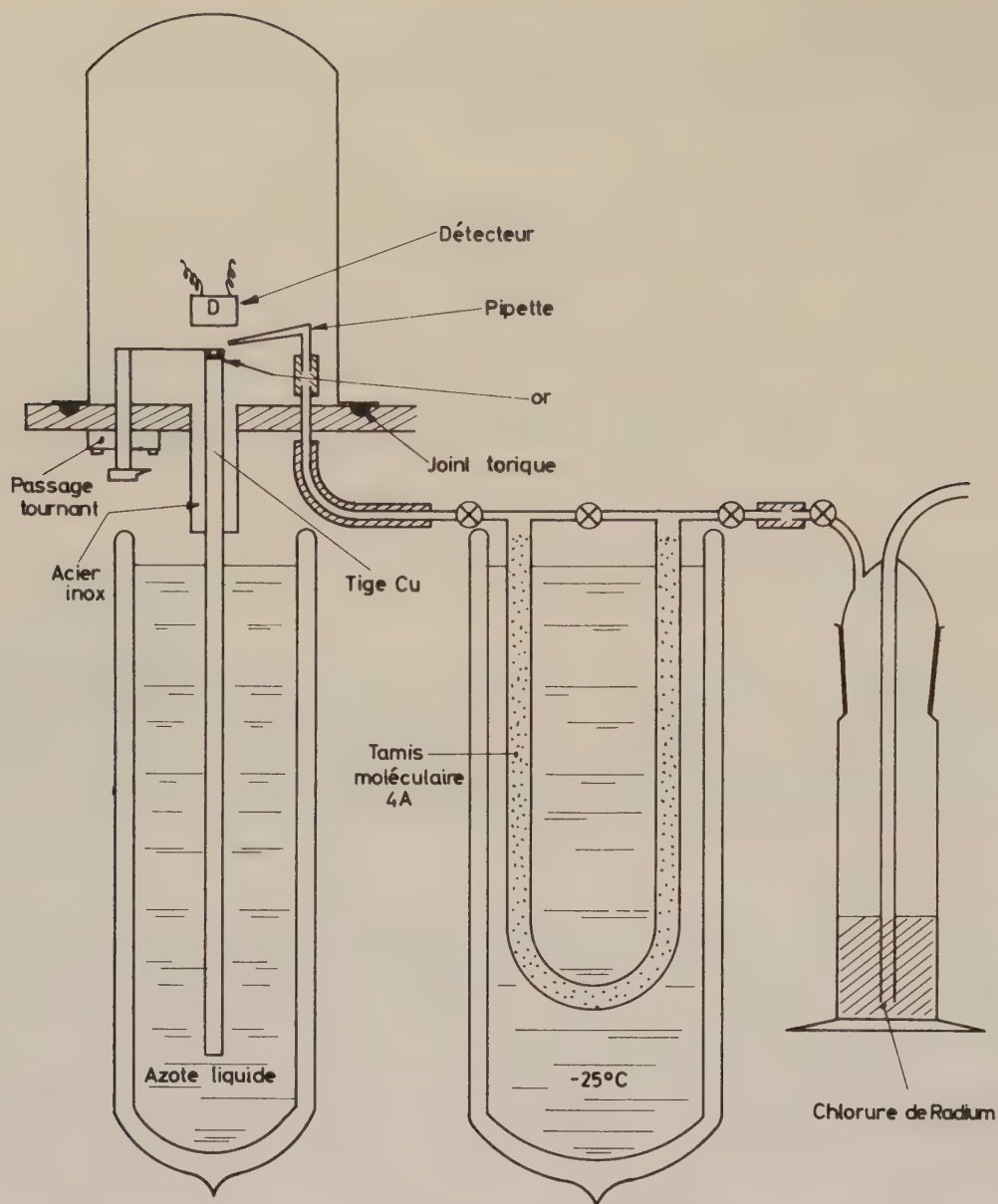


Fig. 2.5.

b) Réalisation

Dans la réalisation de cette installation, plusieurs problèmes se sont posés :

b-1 Isolement thermique de la surface de dépôt

On ne peut établir dans l'enceinte une basse température (voisine de celle de l'azote liquide) sur l'extrémité de la tige qu'en isolant celle-ci thermiquement. Par conséquent on ne peut pas souder directement la tige à la platine. D'un autre côté, à cette température, le contact par un isolant ordinaire tel que le caoutchouc ne peut pas assurer l'étanchéité de l'enceinte. Pour cette raison et pour éviter le contact direct au niveau de la platine, nous avons effectué un "contact à distance" en brasant une première fois la tige de cuivre à l'extrémité d'un tube en acier de 5 cm de longueur, dont l'autre extrémité est brasée à la platine (fig. 2-5), donc en utilisant le fait que le coefficient de conductibilité thermique de l'acier est bien inférieur à celui du cuivre. Un simple calcul montre que, dans ces conditions, la conduction de chaleur est 9 fois plus faible.

Nous avons déterminé la température de l'extrémité de la tige se trouvant dans l'enceinte à vide lorsque sa partie extérieure était plongée dans l'azote liquide, au moyen d'un couple thermo-électrique. Cette température a été trouvée égale à -180°C ; les parois de l'enceinte sont à la température ambiante.

b-2 Suppression de la vapeur d'eau

La présence de la vapeur d'eau dans l'enceinte suscite la formation d'une couche de glace plus ou moins épaisse sur la surface froide, qui est capable d'absorber plus ou moins les particules α du radon et d'élargir la raie.

Cette vapeur d'eau a deux origines différentes : l'eau contenue dans l'enceinte même et l'eau contenue dans la source de radon et qui est entraînée avec celui-ci.

1/ Elimination de l'eau de condensation sur la surface.

A la température qui règne sur la surface de la tige (-180°C), la valeur de la tension de vapeur saturante de l'eau est extrêmement faible. Pour une température de -98°C , cette tension est égale à 15.10^{-6} mm de mercure, au delà cette valeur n'a pas été déterminée.

Or la pression totale dans l'enceinte est de l'ordre de 10^{-3} mm de mercure, donc la vapeur d'eau existant dans l'enceinte (ainsi que celle provenant des parois) vient se condenser sur la surface de la tige. Ce phénomène nous obligerait à effectuer un vide poussé, ce qui pose des problèmes techniques. Nous avons donc pensé résoudre ce problème de la manière suivante :

Avant de refroidir, on protège la surface de la tige de la condensation de la vapeur d'eau à l'aide d'un joint en caoutchouc et d'une lame métallique qui est commandée de l'extérieur par une tige qui traverse la platine à l'aide d'un "passage tournant". L'étanchéité de ce passage est assurée par des joints toriques comme le montre la figure (2-6).

Après avoir fait le vide et refroidi la tige, on attend jusqu'à ce qu'une grande partie de la vapeur d'eau de l'enceinte vienne se déposer autour de la tige. On enlève le couvercle juste au moment où l'on déclenche l'arrivée du radon.

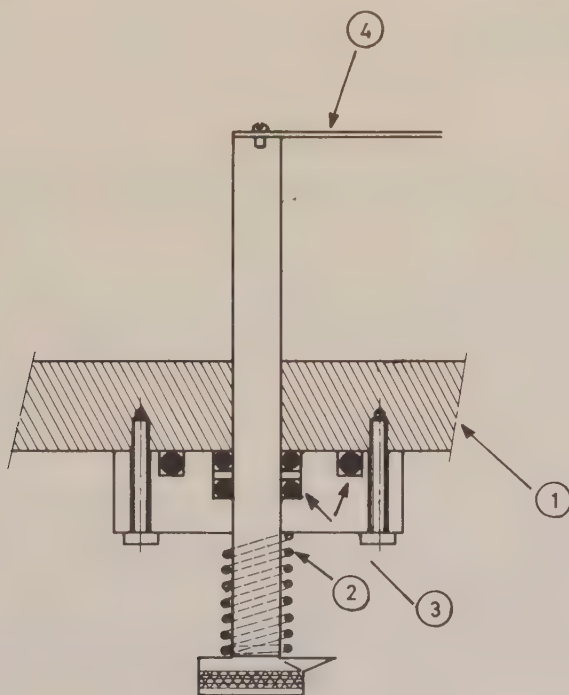


Fig. 2.6. 1/ Platine - 2/ Ressort - 3/ Joint torique - 4/ Lame métallique.

2/ Elimination de l'eau provenant de la source de radon.

La quantité de radon qui se trouve dans la solution, en équilibre radioactif avec 10^{-8} g de radium, occupe $0,66 \cdot 10^{-8}$ mm³ à 0°C et 76 cm de mercure. Il est dilué dans environ 100 cc d'air dans le barboteur à 20°C environ. Une petite fraction de la vapeur d'eau saturante, accompagnant ce gaz, suffirait donc à masquer les atomes de radon en se condensant avec celui-ci sur la surface froide. Ceci exige l'utilisation d'une matière adsorbant l'eau portée par l'air avant son entrée dans l'enceinte et ayant les propriétés suivantes :

- la capacité d'absorption aux basses pressions et pour une humidité relative faible doit être la plus élevée possible ;
- elle ne doit pas adsorber le radon ;
- elle ne doit pas agir sur la surface du détecteur à semi-conducteur.

Dans ces conditions les seuls adsorbants qui peuvent être utilisés sont les "tamis moléculaires" ayant une combinaison de propriétés que nous allons signaler très brièvement.

Lorsque les tamis moléculaires sont activés en éliminant l'eau de cristallisation par chauffage sous vide, ils deviennent des matériaux poreux ayant une grande affinité pour l'eau et les autres gaz. Mais, au contraire des autres adsorbants, les pores des tamis moléculaires sont uniformes et ont des dimensions moléculaires.

Deux types de tamis moléculaires sont couramment utilisés pour le séchage des gaz : le type 4 A, qui a un diamètre de pore qui admet seulement des molécules de diamètre jusqu'à 4 angstroms, et le type 5 A qui accepte les molécules jusqu'à 5 angstroms. Nous avons utilisé le premier type.

Les tamis moléculaires ont presque 5 fois la capacité de séchage des adsorbants du type silice ou alumine lorsque l'eau est présente en concentrations extrêmement faibles. C'est le cas où de très bas points de rosée peuvent être obtenus dans les opérations de séchage. La figure (2-7) montre cet effet. La figure (2-8) montre l'efficacité des tamis moléculaires 4 A dans le domaine des basses pressions.

Ces propriétés exceptionnelles nous ont permis non seulement de sécher le radon, mais aussi d'éliminer les impuretés accompagnant ce gaz qui pourraient se piéger sur la surface froide ou agir sur la surface du détecteur.

c) Résultats

La figure (2-9) montre le spectre α du radon et du radium A obtenu à l'aide de cet appareillage. La figure (2-10) montre un spectre α du radon en équilibre radioactif avec ses descendants à vie courte.

Les caractéristiques de notre installation sont les suivantes :

- détecteur Ortec de superficie 50 mm²
- résolution (largeur à mi-hauteur des raies) 22 à 24 keV
- géométrie 1,3 % : obtenue à l'aide d'une source connue ayant la même géométrie
- activité de source de radium 10^{-8} curie
- comptage obtenu : 230 coups/minute

On déduit de ce taux de comptage, un rendement de piégeage de 80 %.

Dans le cas de la mesure de l'énergie α du radon, on doit utiliser un détecteur à petite surface, en raison de sa haute résolution. Par contre, si on désire mesurer quantitativement de très faibles activités de ce gaz, on arrive à obtenir un rendement de détection de l'ordre de 25 à 35 %, en utilisant un détecteur à grande surface et en diminuant la distance source-détecteur. Dans ce cas, on a un rendement final de l'ordre de 28 %. Ceci permet, en tenant compte du faible mouvement propre du détecteur, de mesurer la teneur en radon dans l'atmosphère ainsi que dans les eaux naturelles et particulièrement dans l'eau de mer qui est très pauvre en radon. Il suffit de prendre un litre environ d'eau et d'en extraire le radon par barbotage.

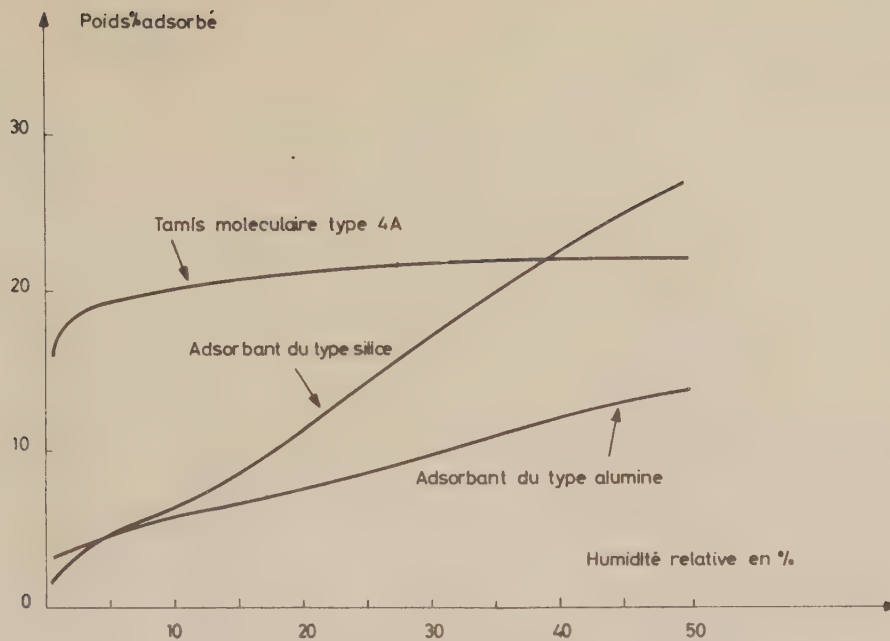


Fig. 2.7. Adsorption de vapeur d'eau 25°C (ref. A2).

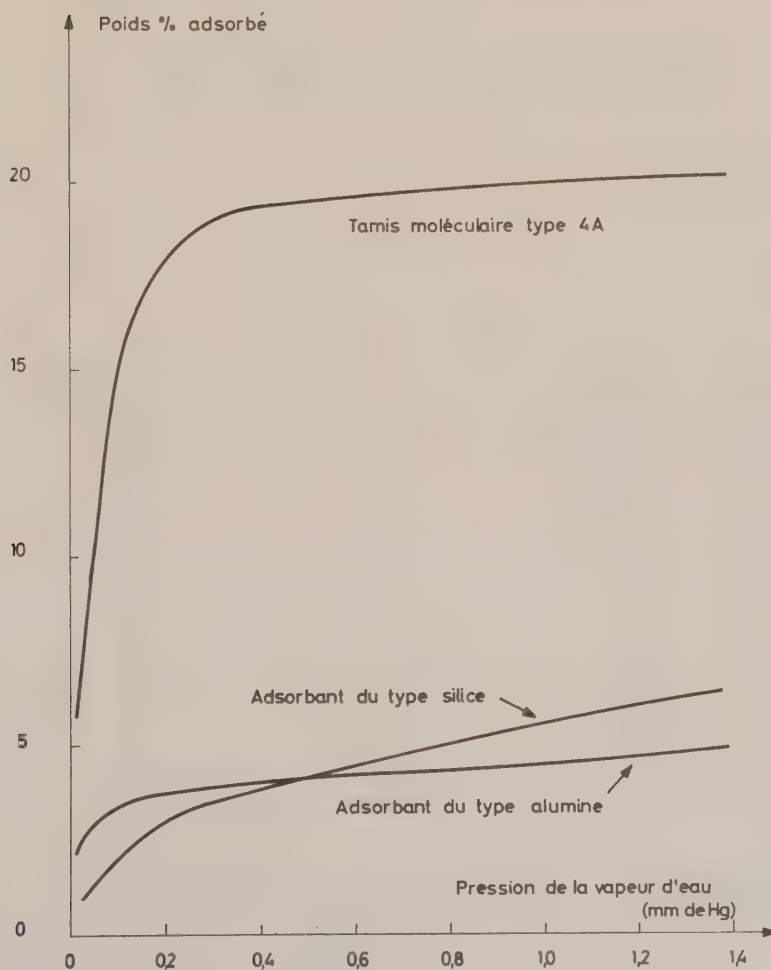


Fig. 2.8. Adsorption de la vapeur d'eau à 25°C (ref. A2).

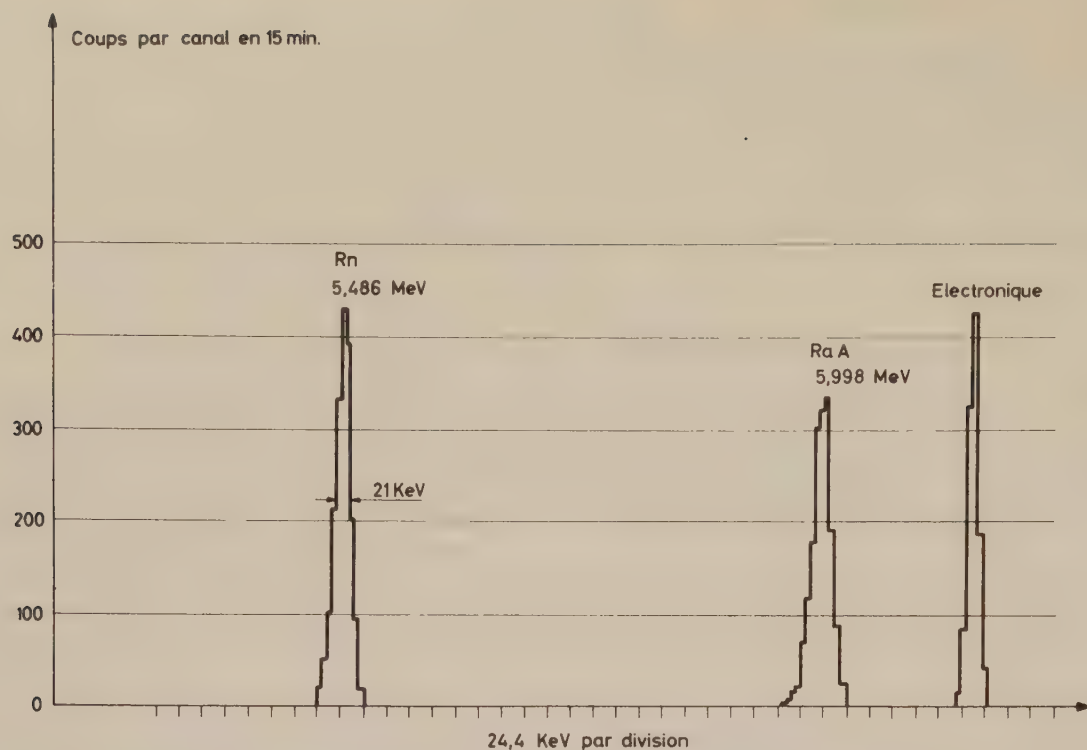


Fig. 2.9. Spectre direct du Rn et RaA.

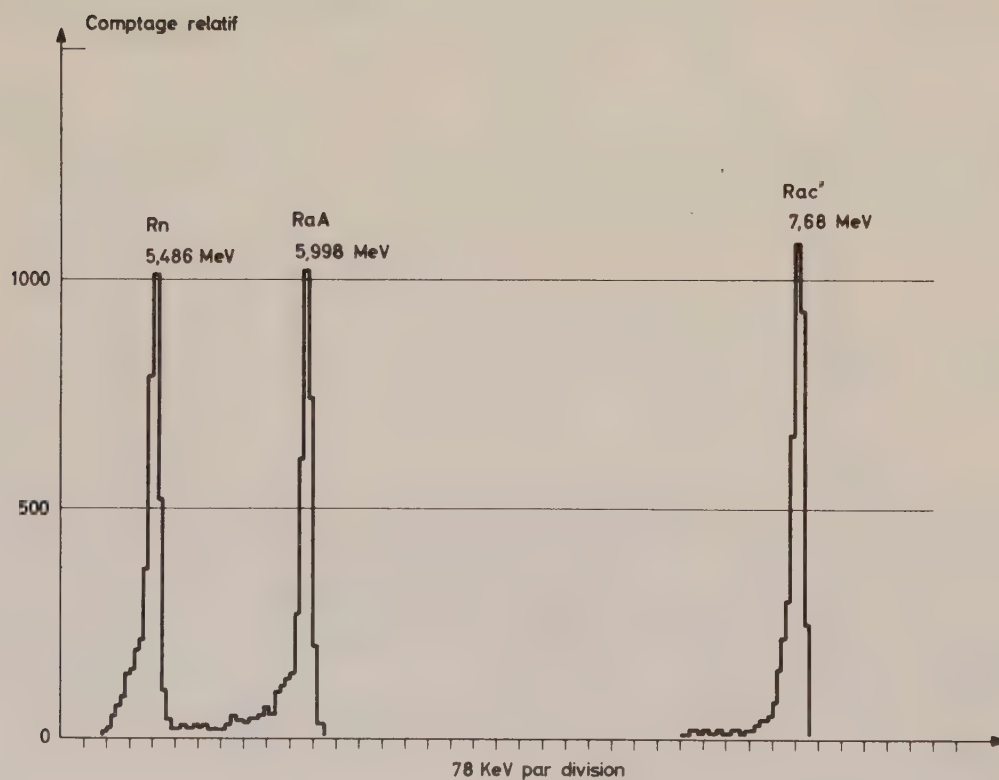
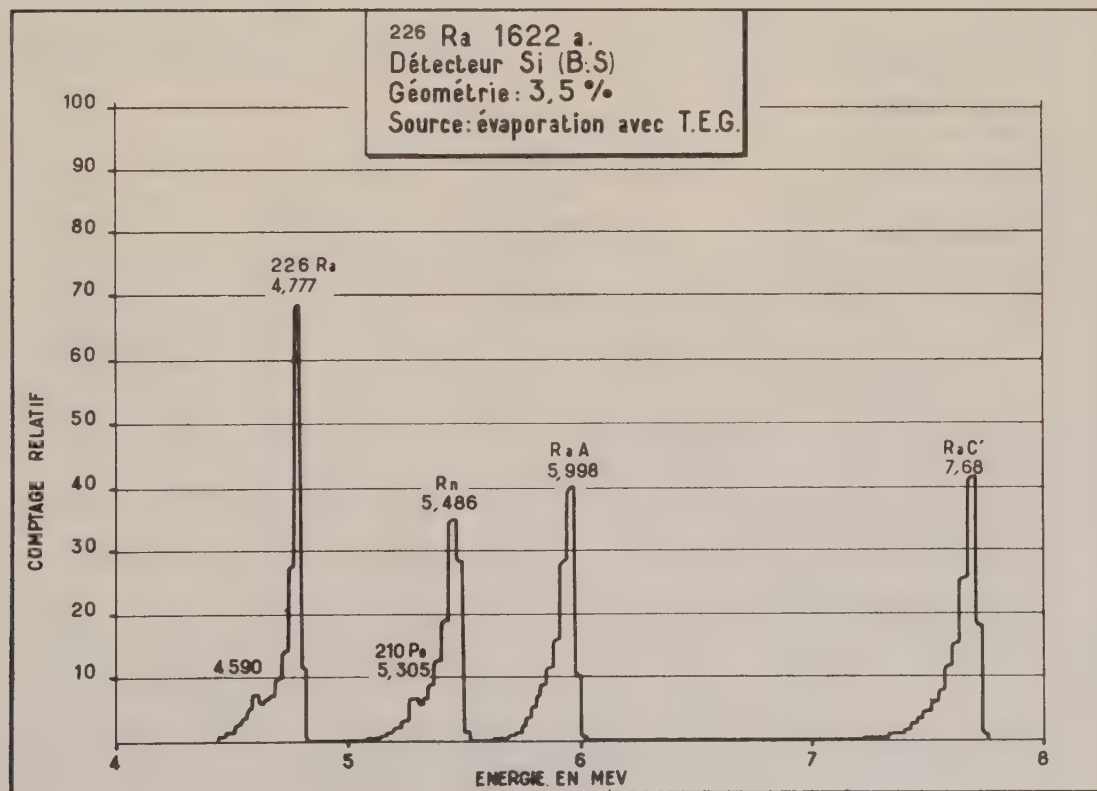
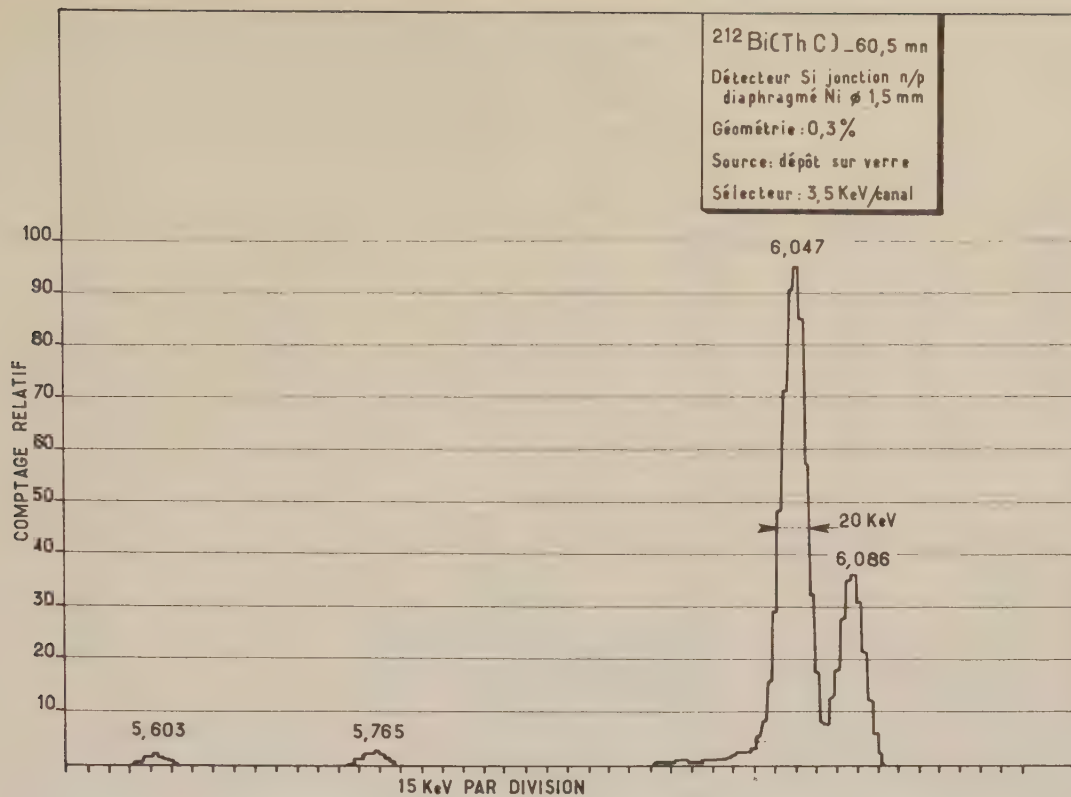
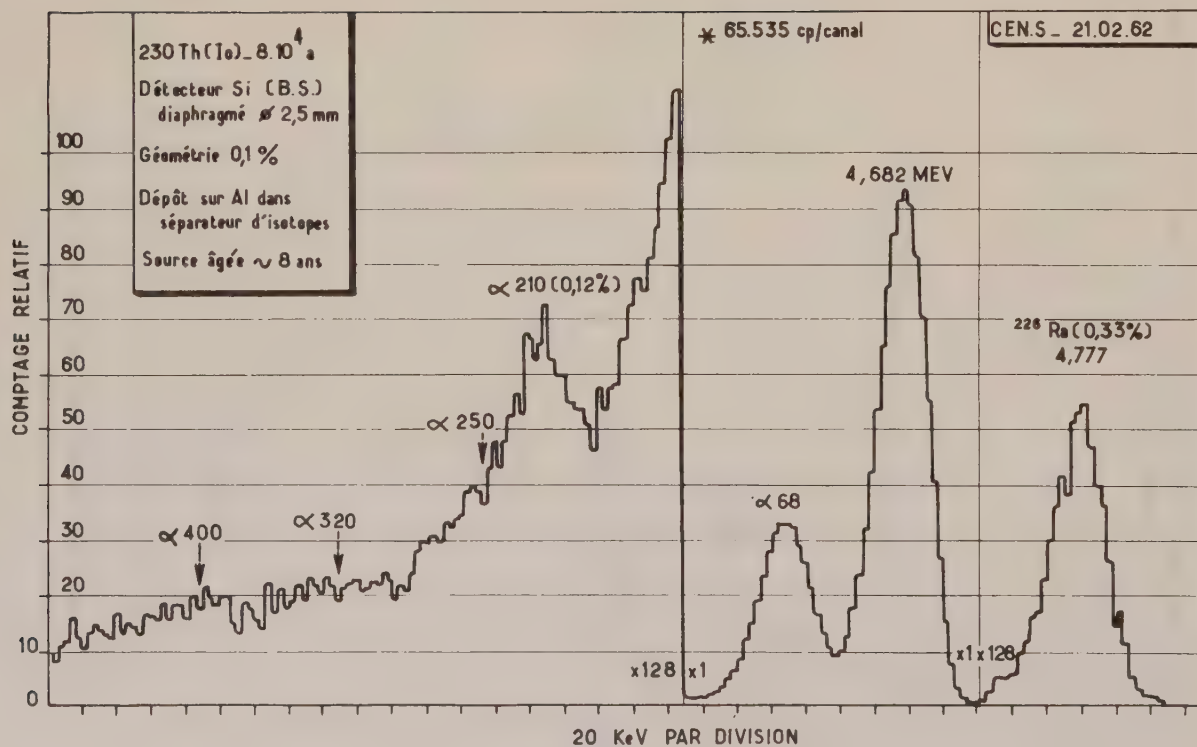
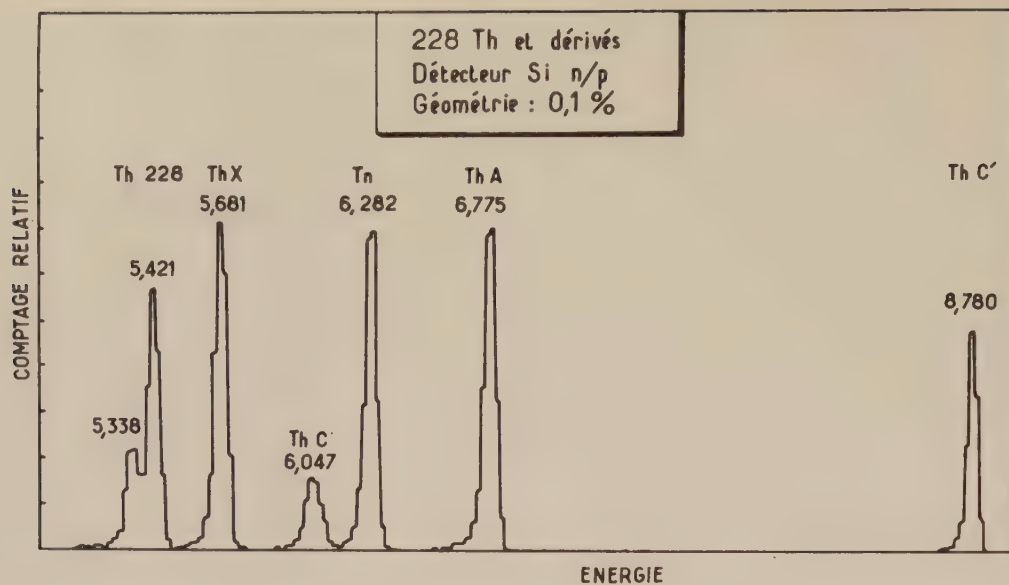
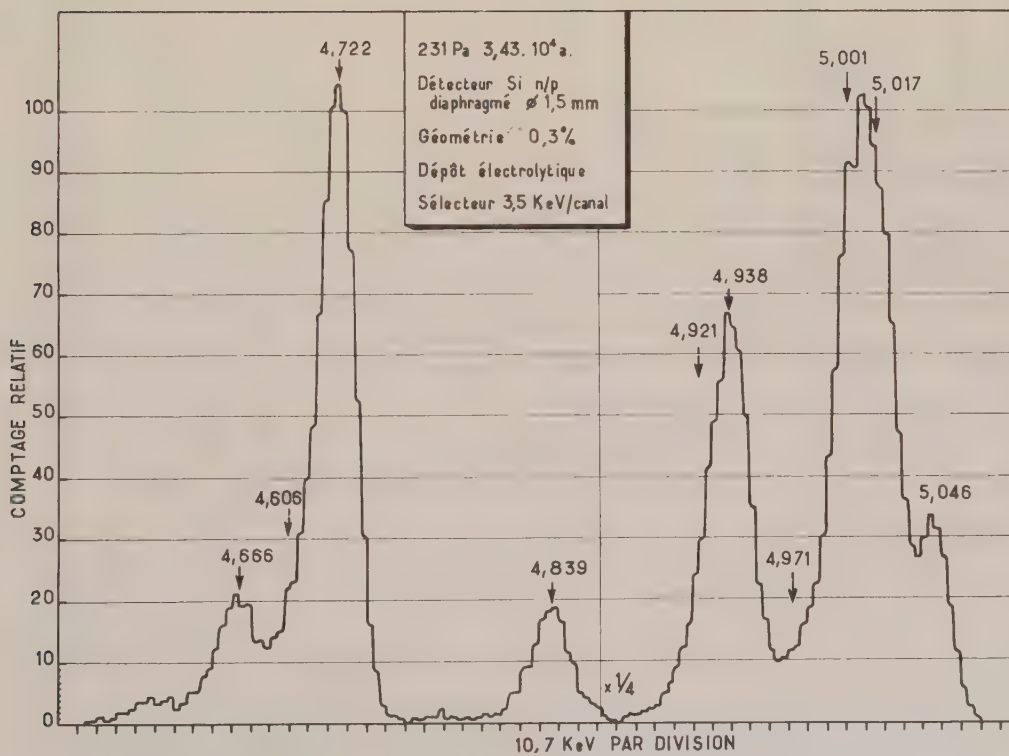
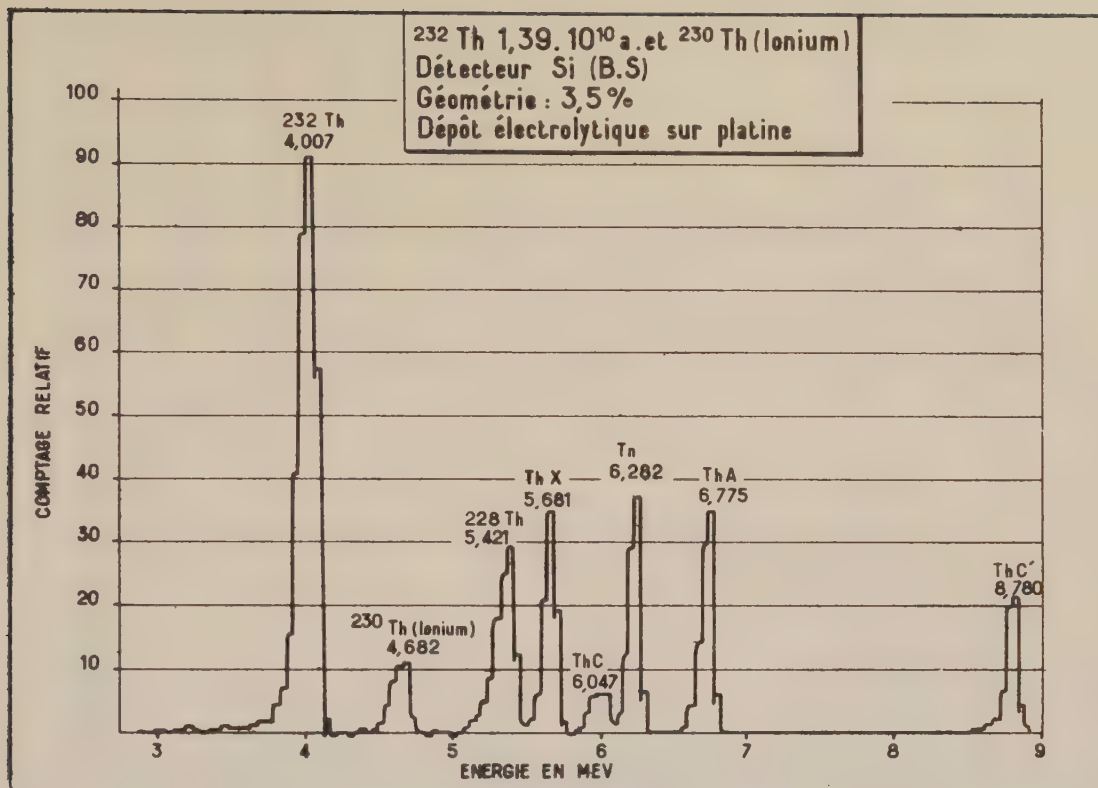


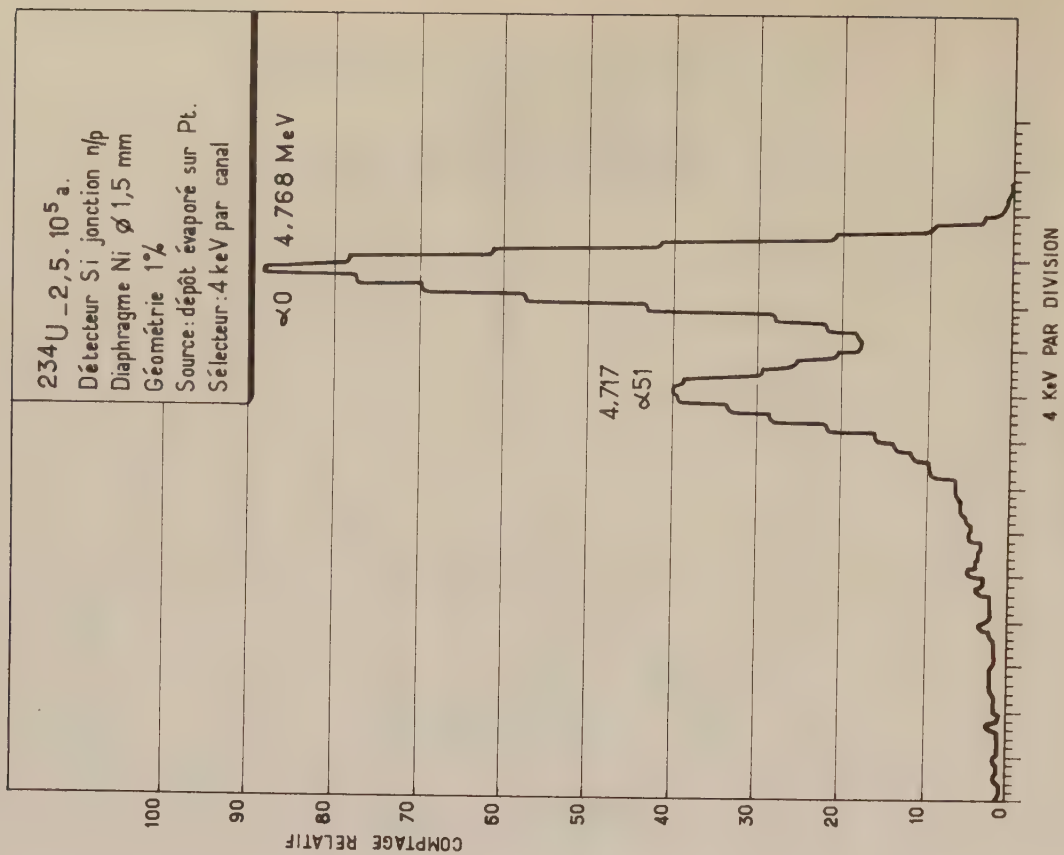
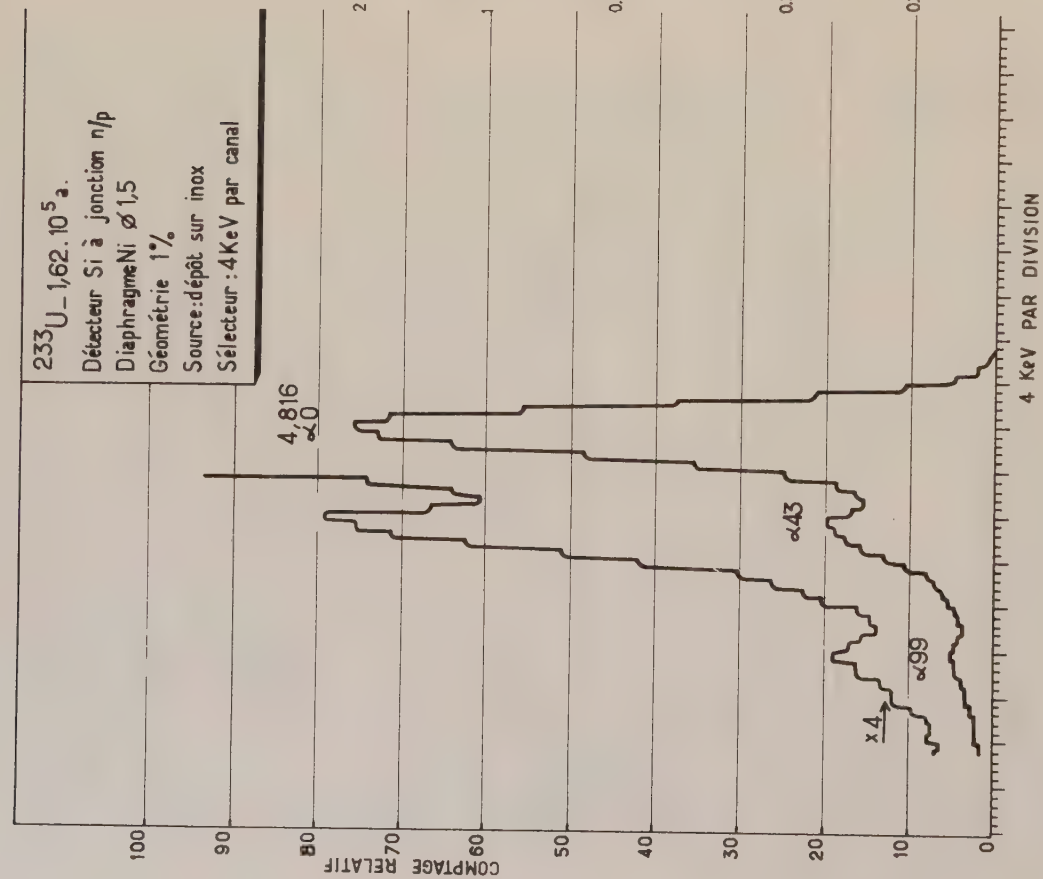
Fig. 2.10. Spectre du radon 222 en équilibre radioactif avec ses descendants à vie courte.

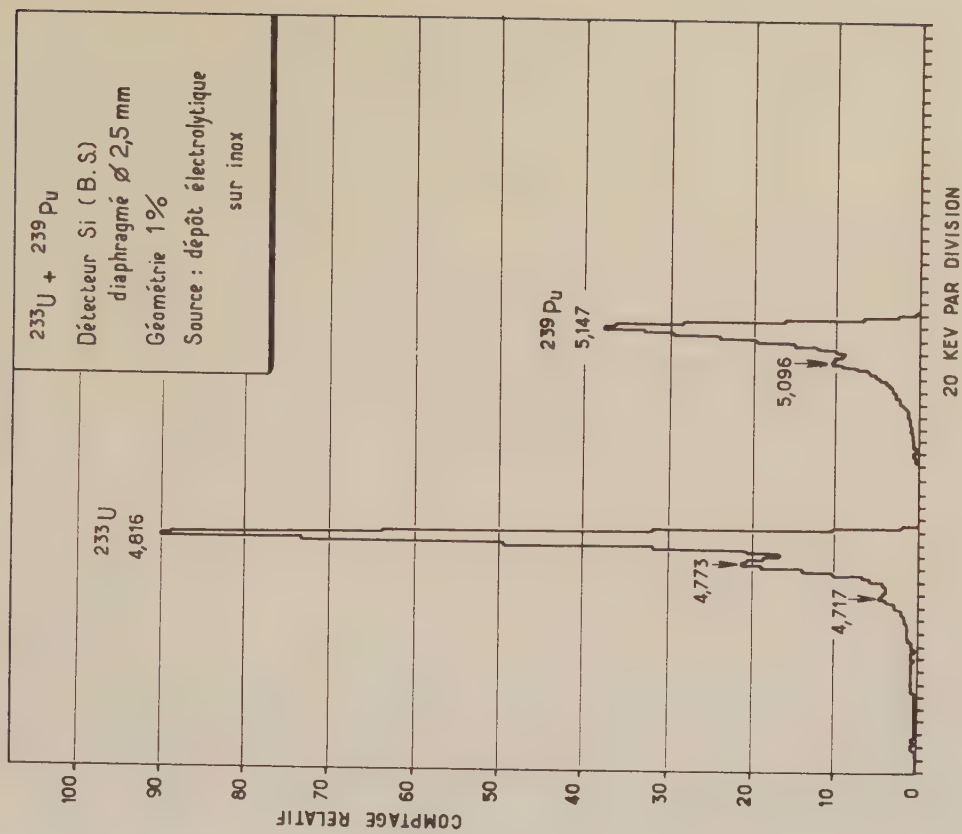
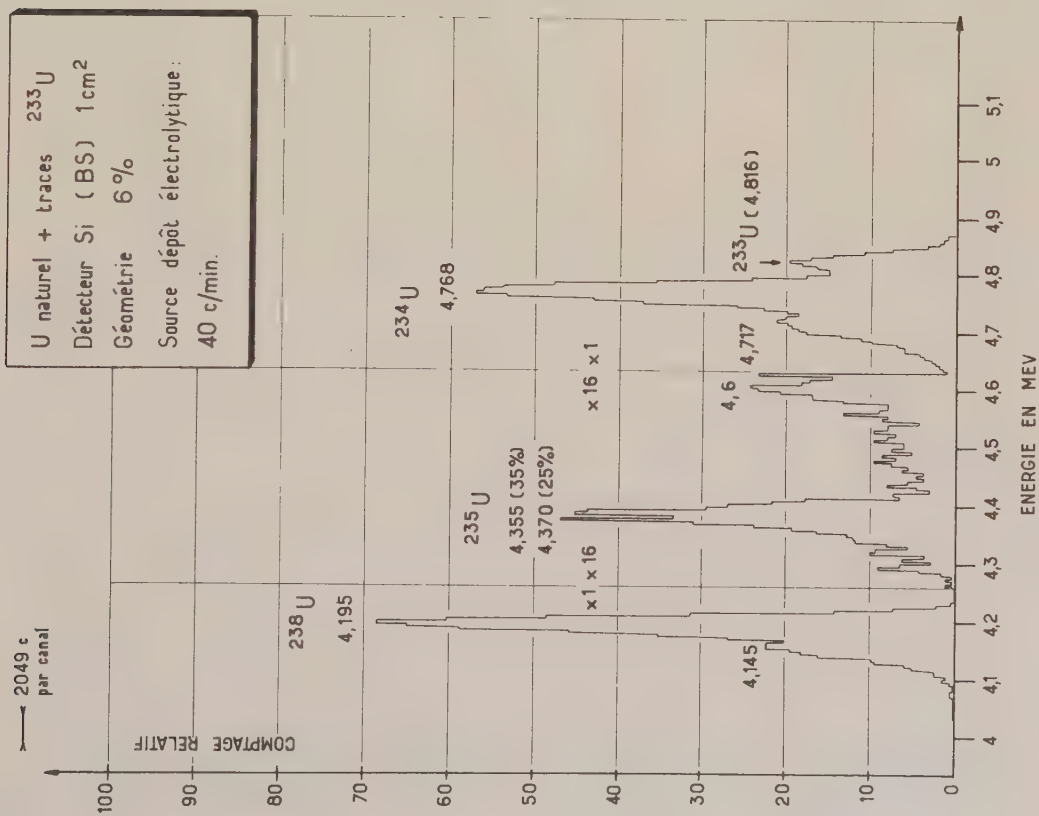
CATALOGUE DE SPECTRES α

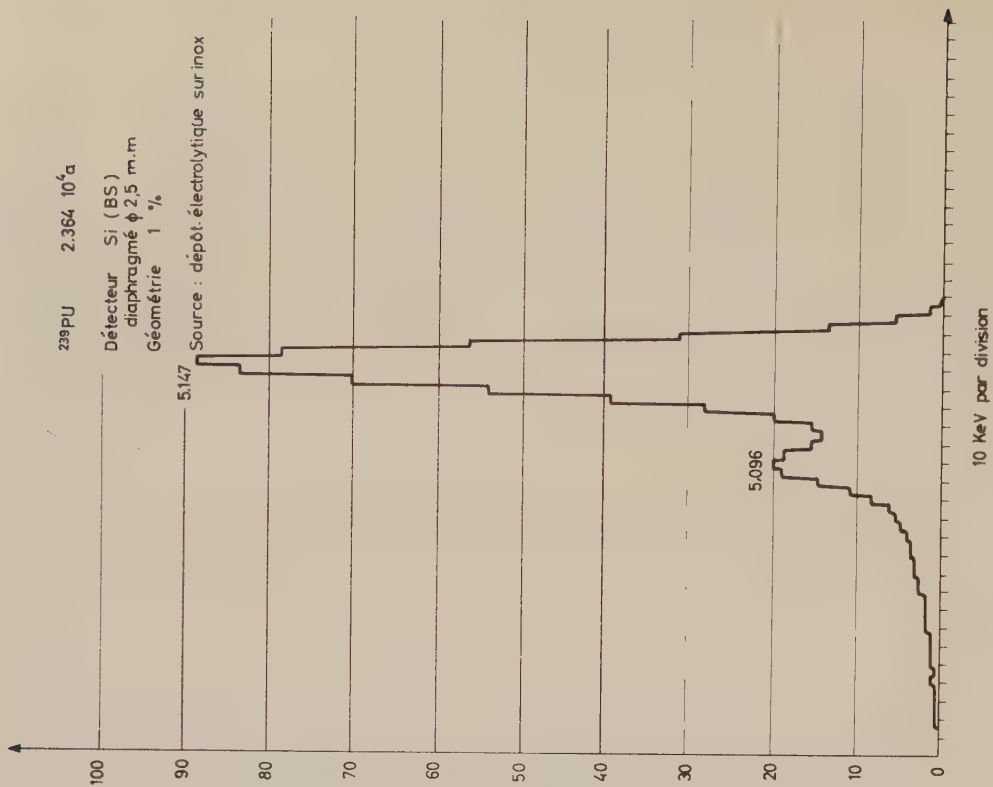
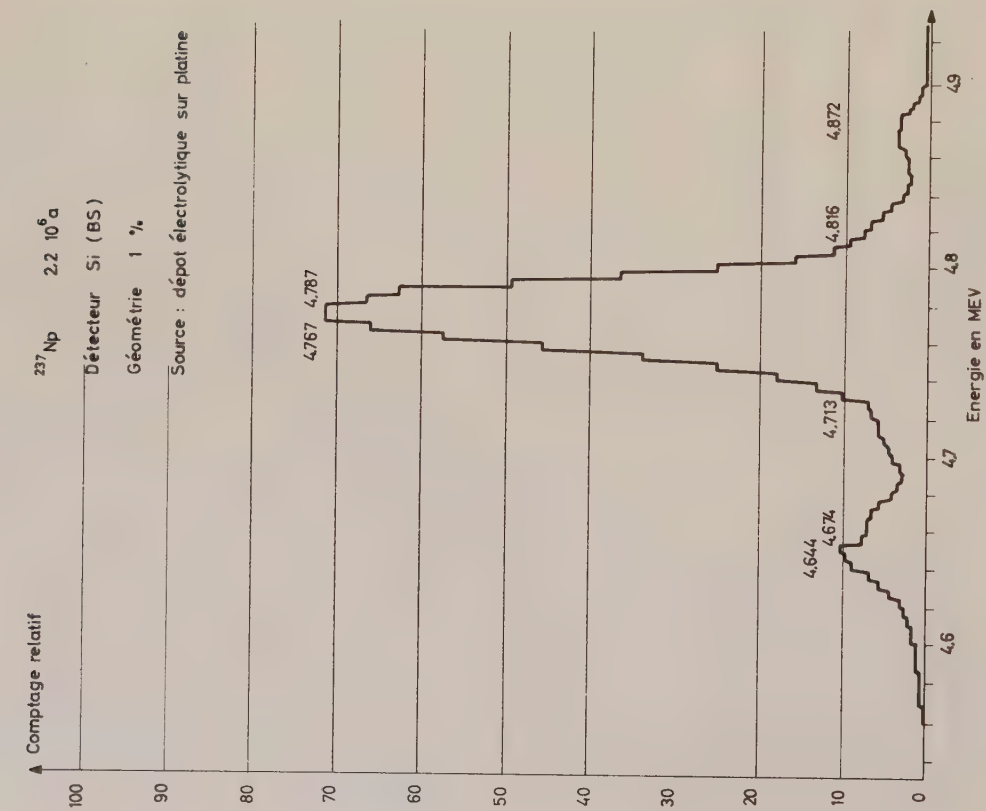


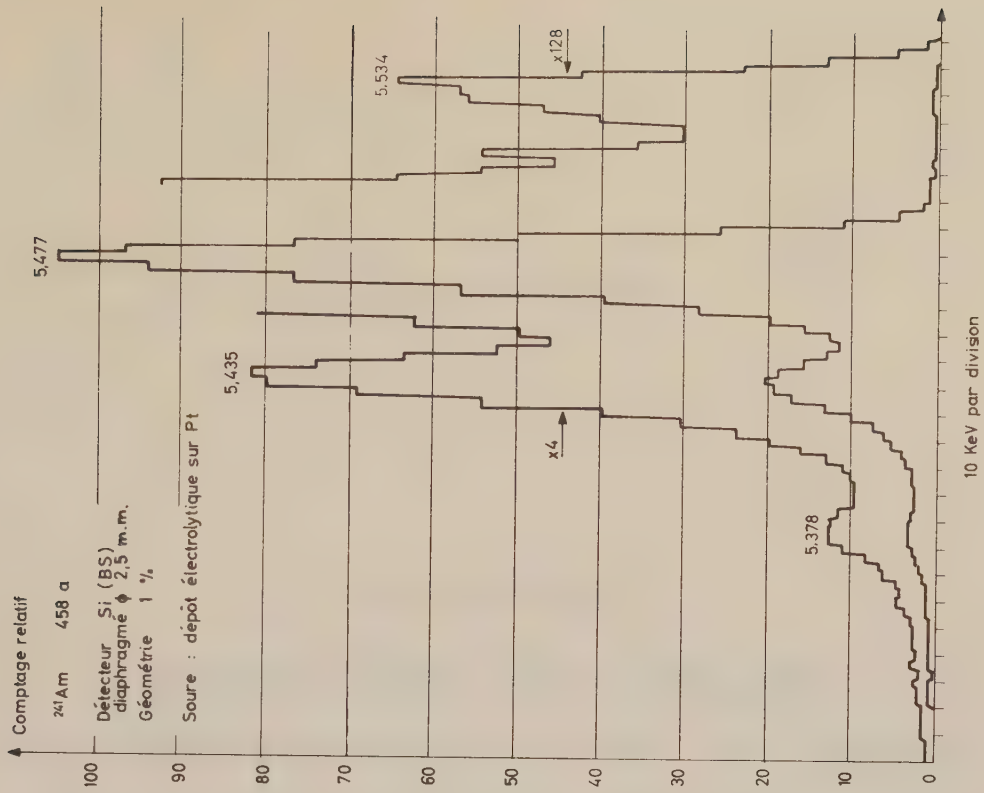
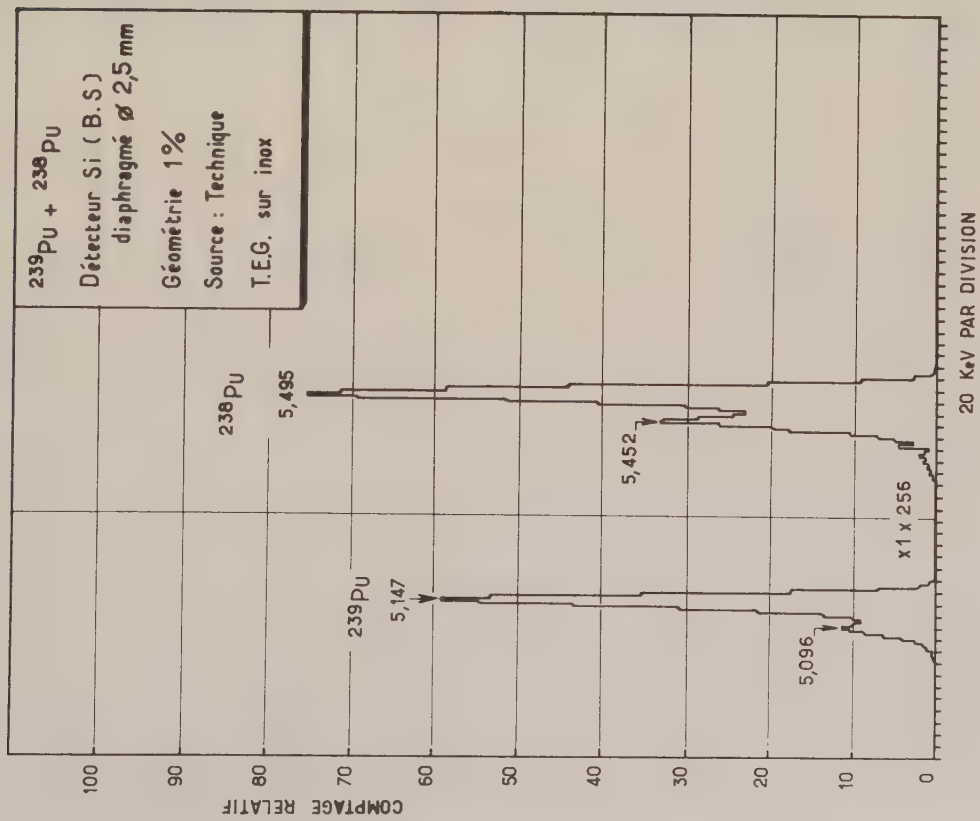


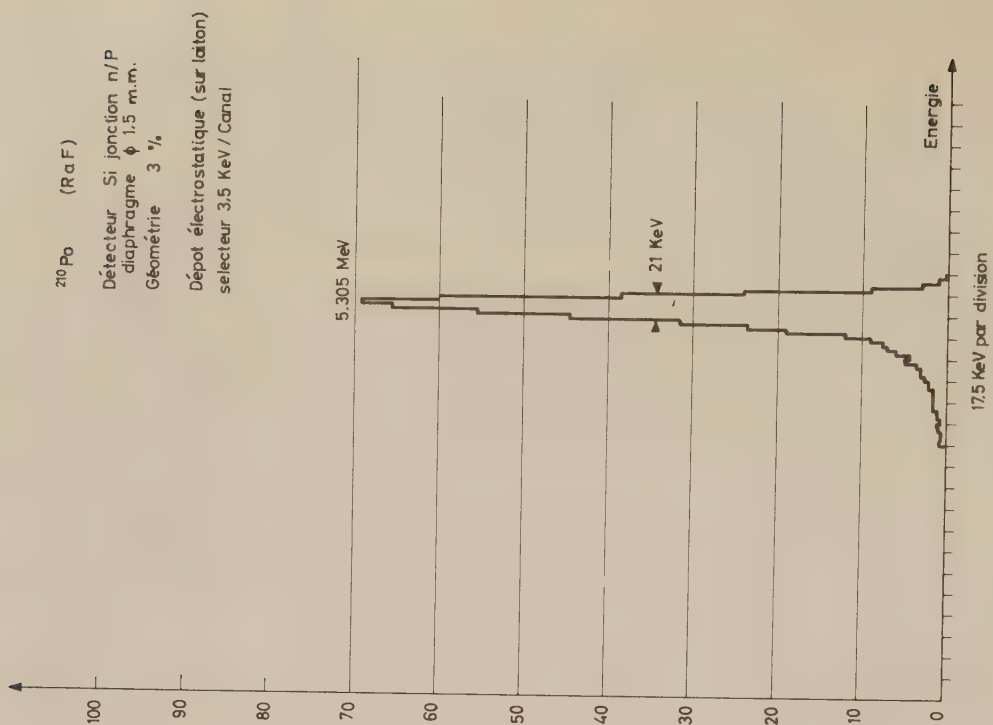
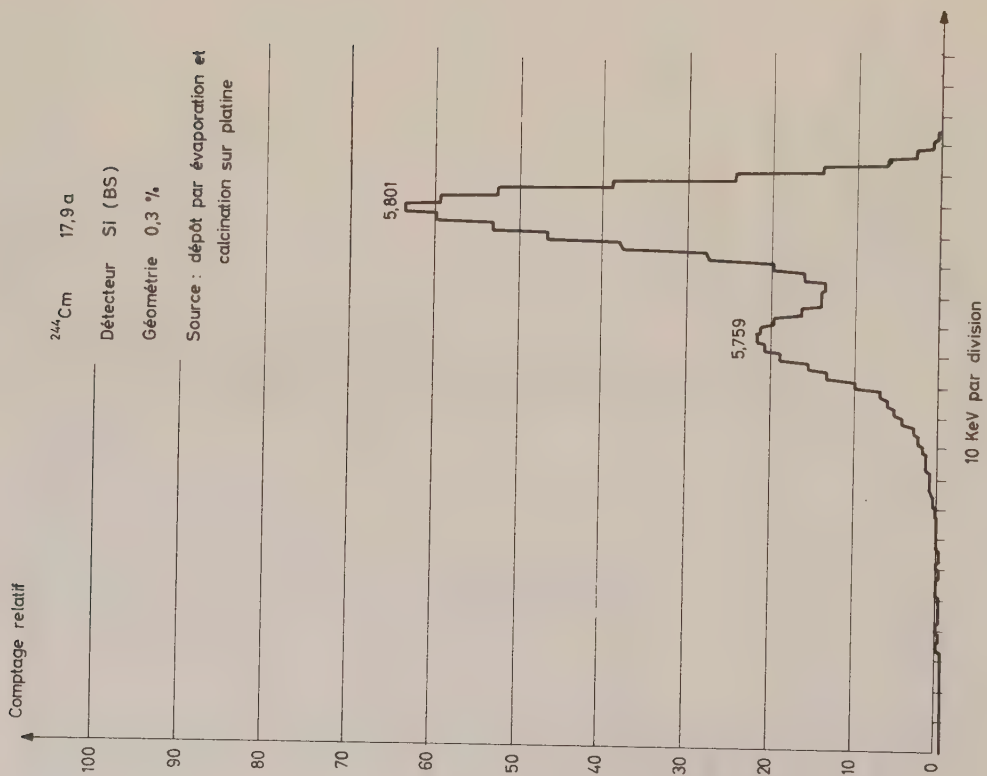












DEUXIÈME PARTIE

**APPLICATION DES MESURES
DE SPECTROMÉTRIE ALPHA A L'ÉTUDE
DU COMPORTEMENT GÉOPHYSIQUE
DU PLOMB 210 ET DU POLONIUM 210**

CHAPITRE III

INTRODUCTION

I - INTERET DE CETTE ETUDE

Les aérosols qui sont présents dans l'atmosphère peuvent être porteurs de nuclides radioactifs émetteurs α , β , et γ . Selon leur nature et leur origine, ces aérosols peuvent être utilisés comme traceurs pour l'étude d'un certain nombre de problèmes concernant les mouvements atmosphériques. Parmi ces problèmes on peut citer : les échanges des masses d'air à différents niveaux et en différents points, ainsi que la diffusion et la circulation générale de l'atmosphère, et les problèmes liés à la physique des nuages et des précipitations. Dans ces études, on a principalement mesuré soit l'activité d'origine artificielle (produits des explosions nucléaires dans l'atmosphère), soit les éléments produits par le rayonnement cosmique (produits de spallation, C_{14} , etc...).

Un trait remarquable de ces "traceurs" est que leur source se trouve principalement dans la stratosphère. Par conséquent ils peuvent être utilisés pour étudier les déplacements des masses d'air de la stratosphère vers la troposphère, mais pas ceux qui se produisent dans le sens inverse.

Avant d'aller plus loin, rappelons que l'atmosphère peut être considérée comme formée de couches successives, différenciées par la valeur du gradient thermique vertical.

La troposphère, qui va de la surface du sol jusqu'à une couche limite théorique appelée "tropopause", située suivant la latitude à une altitude de 6 à 17 km, est caractérisée par un refroidissement progressif avec l'altitude de l'ordre de 5 degrés par kilomètre. Elle est le siège des hydrométéores et de nombreuses perturbations atmosphériques et courants de convection qui altèrent le caractère principalement zonal(*) de sa circulation. Par ailleurs, au voisinage de l'équateur, les échanges méridiens de part et d'autre de celui-ci deviennent si faibles qu'il est possible de considérer les deux hémisphères comme séparés (LABEYRIE et LAMBERT, 1963 - LAMBERT et POLIAN, 1963).

L'intensité des phénomènes de condensations de la vapeur d'eau, puis de sa précipitation au sol, entraîne le nettoyage rapide de tous les aérosols, c'est à dire leur élimination de la troposphère par fixation à la surface des continents et des océans. A ce nettoyage par voie humide, il convient d'ailleurs d'ajouter les échanges directs entre l'atmosphère et la surface du Globe, baptisés "retombées sèches".

Au-dessus de la tropopause, dans la stratosphère, le gradient thermique faible, et inversé, assure une haute stabilité verticale. La circulation y apparaît essentiellement zonale, les transports méridiens étant plus probablement le résultat de phénomènes de diffusion turbulente. La stabilité de l'atmosphère et la quasi absence de condensation de vapeur d'eau entraîne une extrême faiblesse des processus de nettoyage.

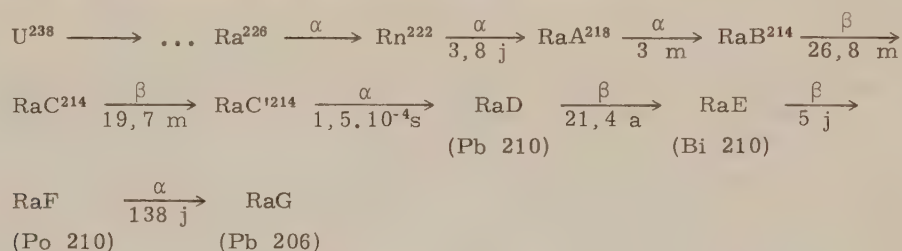
Les échanges d'air, entre stratosphère et troposphère ont été étudiés depuis quelques années, notamment grâce aux aérosols radioactifs artificiels introduits dans la stratosphère par les fortes explosions nucléaires. Il semble aujourd'hui qu'il s'agisse de transferts discontinus liés à la position et à l'intensité des courants jets (LAMBERT 1963 - VASSY et TANAEVSKY 1964 - SHEPPARD 1965). L'injection d'air troposphérique dans la stratosphère apparaît moins nettement puisque l'air qui monte de la troposphère est moins contaminé que celui dans lequel il arrive, bien qu'il existe semble-t-il d'importants courants ascendants aux latitudes équatoriales. Il serait donc souhaitable de disposer d'un traceur engendré dans la troposphère et qui marquerait l'arrivée de celle-ci dans la stratosphère.

(*) c'est à dire suivant une latitude constante.

L'utilisation comme traceurs atmosphériques des éléments radioactifs naturels formés par le dépôt actif du radon présente à cet égard des avantages certains. Tout d'abord leur formation ayant lieu principalement dans la troposphère, ils permettent d'étudier plus complètement les mécanismes d'échange des masses d'air, dans les deux sens, à travers la tropopause. De plus le niveau plus élevé de leur activité par rapport à celle des produits des explosions nucléaires, simplifie la mesure de leur concentration atmosphérique. Enfin, la stabilité du flux de radon issu du sol des continents permet d'effectuer des mesures plus régulières. C'est cette utilisation de l'un des descendants du radon, le plomb 210, comme traceur de la troposphère dont nous allons parler maintenant.

II - ORIGINE DU PLOMB 210 DANS L'ATMOSPHERE

Le radon est un des éléments formés par la désintégration de l'uranium 238, nuclide présent dans le sol et dans la plupart des roches en quantités variables. Le radon étant un gaz peut s'échapper de la surface de la croûte terrestre vers l'atmosphère où il se désintègre pour former une chaîne de descendants dont chacun est produit par la désintégration du précédent, et qui sont normalement à l'état solide aux conditions de température de l'atmosphère ; l'élément final est le plomb 206 qui est stable. Le tableau ci-dessous donne la liste de ces éléments avec leurs périodes radioactives et les rayonnements émis par chaque élément. Dans un but de simplification on a, dans ce tableau, omis volontairement les embranchements secondaires :



La période relativement longue du radon (3,8 jours) lui permet dans une certaine mesure d'atteindre, par diffusion ou entraînement à partir du niveau du sol, des zones qui normalement ne devraient pas en contenir : atmosphère au-dessus des océans, où on ne trouve presque jamais moins d'un picocurie par mètre cube (LAMBERT 1963) et haute atmosphère, où MACHTA et LUCAS (1962) ont trouvé des concentrations de 0,1 à 8 picocuries/m³.

Si les quatre premiers descendants du radon ont des périodes relativement courtes, inférieures à la demi-heure, ce qui explique que l'équilibre radioactif puisse souvent se réaliser entre le radon gazeux et ses premiers descendants solides, à partir du radium D ($^{210}_{82}\text{Pb}$) de période 21,4 ans, (ECKELMANN et al. 1960), on se trouve en présence d'une nouvelle partie de la chaîne de désintégrations dont le comportement géophysique est complètement différent.

D'autres gaz radioactifs naturels, le thoron ($^{220}_{86}\text{Rn}$) et l'actinon ($^{219}_{86}\text{Rn}$) diffusent également du sol dans l'atmosphère, mais leurs chaînes de désintégrations s'arrêtent respectivement aux plomb 208 et plomb 207, et ne comportent donc pas d'élément à longue période, analogue au plomb 210 (RaD).

III - PRINCIPALES ETAPES DE NOTRE TRAVAIL

De nombreux auteurs ont déjà envisagé la possibilité d'utiliser du radium D (^{210}Pb) comme traceur dans le domaine de la physique de l'atmosphère et de la géophysique en général.

1/ BURTON et STEWART (1960) par exemple, au cours d'une étude approfondie sur la répartition du plomb 210 et du polonium 210 dans l'atmosphère, ont démontré qu'une fraction du plomb 210 présent dans la troposphère avait une origine stratosphérique : ceci est dû à la réinjection dans la troposphère du plomb 210 formé dans la stratosphère par le radon parvenu jusqu'à cette altitude. Bien que la proportion de radon dans la stratosphère soit faible, par suite de l'absence de pro-

cessus de nettoyage, le plomb 210 peut s'y accumuler. On peut ainsi parler d'un réservoir stratosphérique. Ces auteurs ont également tenté d'évaluer le temps de résidence troposphérique de ces nuclides à partir d'une équation déjà proposée par LEHMAN et SITKUS (1959).

Cependant, si l'on tient compte de la différence de comportement des deux fractions stratosphériques et troposphériques du plomb 210, et du polonium 210, cette équation ne suffit plus. Notre étude nous a amené à introduire dans cette équation un facteur de correction qui allonge de quelques jours le temps moyen de séjour dans la troposphère, calculé à partir des mesures relatives des concentrations de plomb et de polonium 210 dans l'eau de pluie (chapitre V).

2/ Dans les travaux antérieurs, le processus de nettoyage "sec" du plomb 210 n'a jamais été pris en considération. Nous avons donc étudié l'importance de ce dépôt qui peut atteindre jusqu'à 50 % de la retombée totale (chapitre VI).

3/ Le bilan du plomb 210 à l'échelle du Globe a été effectué par GOLDBERG en 1962. Ce bilan cependant nous semble incomplet en raison du manque de données numériques et parce que d'importants travaux ont été publiés depuis, relativement aux transports d'aérosols dans l'atmosphère. Nous avons essayé, en tenant compte de l'importance des retombées sèches et des différents phénomènes qui peuvent influencer ce bilan, de reprendre ces calculs d'une manière plus détaillée (chapitre VIII).

4/ Nous avons aussi appliqué les mesures de concentration du plomb 210 par radioactivité α à dater les couches de glaces antarctiques superficielles. La très grande sensibilité de nos mesures nous a permis en outre d'analyser les fluctuations de concentration du plomb 210 le long d'une carotte de névé et de trouver dans ces concentrations une certaine périodicité qui semble être en relation avec l'activité solaire (chapitre VII).

Dans tous ces travaux nous avons étudié le comportement géophysique du plomb 210 en le mesurant par l'intermédiaire de son descendant le polonium 210 (RaF), émetteur α de période 138 jours.

En effet, le plomb 210 ne peut être mesuré directement par suite de la faible énergie de son rayonnement β^- (0,017 MeV). Le descendant direct du plomb 210 est le bismuth 210 émetteur β^- d'énergie 1,17 MeV et dont la période est de 5 jours, ce qui fait qu'il est assez rapidement en équilibre avec le plomb 210. Mais les compteurs β n'ont pas un mouvement propre aussi faible que les détecteurs α à semi-conducteur et, d'autre part, la moindre trace d'émetteurs β à longue période, tels que certains produits de fission peut fausser la mesure. C'est pourquoi nous avons utilisé le polonium 210 émetteur α qui peut être mesuré avec des appareils à très faible mouvement propre tels que celui que nous avons décrit précédemment. On ne trouve d'autre part pratiquement aucun émetteur α naturel de longue période dans l'atmosphère et le seul radionuclide artificiel émetteur α qui ait été signalé (plutonium 239) peut être aisément distingué du polonium par spectrométrie α , son énergie étant de 5,147 MeV, au lieu de 5,3 MeV pour le polonium, puisque la résolution de notre appareil est meilleure que 0,8 %, soit 40 keV.

La sensibilité de cette méthode s'est ainsi révélée 40 fois meilleure que celle qu'il était possible d'atteindre en mesurant l'activité du plomb 210 par l'intermédiaire du bismuth 210 (PICCIOTTO et al. 1964).

Si le polonium est bien en équilibre avec le plomb 210, ce qui est le cas dans les névés polaires stratifiés, la mesure de l'activité due au polonium nous permet de trouver la concentration du plomb 210. Dans le cas de l'eau de pluie où cet équilibre est détruit par le processus de nettoyage lui-même, deux mesures de polonium, éloignées de plusieurs mois, permettent d'étudier ce déséquilibre et les phénomènes qui en sont la cause. En effet durant la période de stockage, du polonium est à nouveau formé par désintégration du plomb 210 contenu dans l'échantillon, jusqu'à ce qu'on atteigne l'équilibre radioactif, et la mesure de cette quantité de polonium peut être utilisée pour estimer l'activité du plomb 210 présent initialement dans l'échantillon d'eau de pluie.

Nous devons pour effectuer ces dosages, mettre le polonium 210 sous forme de source spectrographique, ce qui nous amène à effectuer une séparation chimique délicate que nous allons exposer.

CHAPITRE IV

MÉTHODES DE SÉPARATIONS CHIMIQUES

I - PRINCIPE DES DIVERSES METHODES

Après avoir rappelé brièvement les principales techniques de séparation des éléments présents à l'état de trace, nous exposerons celle que nous avons mise au point pour la séparation des traces de polonium et de plomb 210 dans les échantillons d'eau de pluie et d'eau de fusion des glaces polaires.

a) Extraction par solvant

Un procédé pour la séparation des traces des descendants à longues périodes du radon est basé sur la formation de complexes entre ces éléments et la diphénylthiocarbazone, communément appelée "dithizone".

La dithizone est soluble dans la plupart des solvants organiques tels que le tétrachlorure de carbone ou le chloroforme (solution verte). Elle forme des dithizonates très colorés avec divers métaux. Le coefficient d'extraction dépend de la concentration du réactif et du pH du milieu. Il varie largement d'un métal à l'autre, ce qui permet d'envisager des procédés spécifiques de séparations des métaux en plusieurs étapes à différents pH.

SANDELL (1959) a donné des détails sur l'utilisation de la dithizone. BOUSSIÈRE et FER-RADINI (1950) ont déterminé les conditions nécessaires pour l'extraction optimale de traces des descendants à longue période du radon (Ra D-E-F). Le plomb est extrait à pH 4-9, le bismuth à pH 1-6 et le polonium à pH 0-5. A partir de ces résultats, il est possible de sélectionner des conditions convenables permettant de séparer efficacement les Ra D-E-F.

Selon BURTON et STEWART (1960) la dithizone n'extrait pas de produits de fission importants, et des séparations efficaces de l'activité naturelle et de celle due aux produits de fission pourraient ainsi être possibles. Cependant ces conclusions ne sont pas définitives et plusieurs auteurs ont trouvé des coefficients d'extraction importants pour certains produits de fission. Ainsi par exemple le tellure (MABUCHI 1956), le technétium (ISHIMORI 1961), le molybdène et le zirconium (LEFORT et TARRAGO 1965).

b) Echange d'ions

Les méthodes d'échange d'ions pour la séparation des mélanges de Ra D-E-F sans entraîneur ont été décrites (RABY et HYDE 1952 - ISHIMORI 1955). Pour déterminer le rendement de séparation du polonium par cette méthode nous avons enrichi avec une petite quantité de polonium deux litres d'eau de pluie que nous avons préalablement acidifiée avec de l'acide chlorhydrique de façon à ce que son acidité soit égale à 2 N. On a fait passer cette solution sur une colonne de résine échangeuse d'anions (Dowex 1 x 8 100 à 200 mesh). Ainsi on a séparé le polonium des autres substances présentes dans l'eau de pluie par adsorption sur la colonne de résine. La désorption du polonium s'effectue à l'aide de l'acide nitrique concentré. Pour 200 picocuries de polonium introduits dans 2 litres d'eau de pluie nous avons obtenu un rendement d'extraction de 65 %. On voit par ailleurs que le rendement baisse en fonction directe de l'activité (BURTON et STEWART 1960).

a) Principe de la méthode : séparation par précipitation

De nombreuses méthodes de chimie ordinaire ainsi que de radiochimie font appel à des réactions de précipitation. Comment séparera-t-on par précipitation les substances qui existent sous forme de trace alors que leur concentration est souvent bien inférieure à celle exigée par le produit de solubilité, et que, même si le précipité peut se former, la quantité en est pratiquement imperceptible ? Bien entendu si la radioactivité est due à un isotope particulier d'un élément existant à l'état stable, on peut ajouter une quantité plus grande de cet élément comme entraîneur sous une forme chimique convenable et les problèmes chimiques des éléments trace deviennent alors des problèmes de chimie ordinaire. Dans le cas du polonium, étant donné qu'il n'existe pas d'isotope non radioactif de cet élément, il était nécessaire de trouver un autre élément qui puisse servir d'entraîneur.

On sait que le polonium peut être coprecipité sous forme de sulfure en milieu acide avec un autre sulfure insoluble tel que les sulfures de plomb, de cuivre ou de bismuth (BAGNALL 1957). L'hydroxyde de polonium étant insoluble en milieu ammoniacal, il peut aussi être coprecipité avec l'hydroxyde de plomb. La technique consiste à ajouter un agent précipitateur à une solution contenant d'une part la trace de polonium et d'autre part un composé précipitable de l'entraîneur.

Nous avons choisi le plomb comme entraîneur. L'inconvénient est que la plupart des minerais de plomb se trouvent au voisinage de roches granitiques donc riches en uranium et en ses produits de filiation. Dans le plomb d'extraction récente on trouve donc une certaine quantité de plomb 210. Par exemple, en dosant le plomb 210 dans une solution d'acétate de plomb (Prolabo R.P.), nous avons mesuré $0,8 \cdot 10^{-12}$ grammes de plomb 210 (soit 144 dpm) par gramme de plomb stable. Cette proportion de plomb 210, bien que très faible, suffirait à fausser nos mesures. Il est par conséquent nécessaire d'utiliser un plomb dont l'extraction date au moins de quelques centaines d'années, ce qui a permis au plomb 210 de se transformer presque complètement en plomb 206. Nous nous sommes donc procuré deux morceaux de plomb antique, un morceau de lingot de plomb provenant des fouilles de Carro (près de Marseille, dû à l'amabilité du Directeur des antiquités de Marseille, qui n'a toutefois pas pu nous préciser l'époque du gisement) et un anneau de plomb provenant de l'épave du Titan (premier siècle avant Jésus-Christ). Après une purification extrêmement soignée, les solutions de nitrate de plomb faites à partir de ces deux échantillons ne contenaient aucune trace de plomb 210 et ont par conséquent pu nous servir d'entraîneur au cours de nos mesures.

Finalement le traitement consistant à extraire les traces de plomb 210 et de polonium 210 est effectué sur des échantillons de 2 litres d'eau de pluie, acidifiée par de l'acide nitrique (de façon que la solution finale soit 0,05 N). Dans toutes les opérations que nous allons décrire le polonium suit le plomb, dont il sera séparé ensuite par déplacement électrochimique.

b) Différents stades de traitement

Les différents stades du traitement sont résumés dans le tableau suivant.

1/ Echantillon (2 litres pH 1)

ad. $(\text{NO}_3)_2 \text{Pb}$ (entraîneur 30 mg Pb^{++})

S $(\text{NH}_4)_2$ ajuster le pH 3 > pH > 2

chauffer (80°)

2/ précipité

ad. eau regale (5 à 10 c.c.)

diminution et dilution

$\text{NH}_4 \text{OH}$ (ajuster pH 9,5)

culot de centrifugation

surnageant

ad. $\text{NO}_3 \text{H}$ (0,5 N)

ou $\text{CH}_3 \text{COOH}$ (3 N)

séparation du polonium
par dépôt spontané sur
Ag

filtrat
jeter

b-1 Précipitation sous forme de sulfure

Il est important de choisir une quantité convenable d'entraîneur. Une mesure de la quantité d'entraîneur est souvent nécessaire aux différentes phases du traitement chimique pour déterminer le rendement de chaque stade ou à la fin de toute l'opération ; de trop petites quantités d'entraîneur présentent alors des inconvénients. D'autre part, il est nécessaire que la quantité d'entraîneur soit faible pour faciliter le dépôt spontané du polonium sur une petite surface d'argent. L'addition de 30 mg de plomb pour un échantillon de deux litres s'est montrée satisfaisante. On commence à chauffer la solution jusqu'à environ 70°, on y ajoute quelques centimètres cubes de sulfure d'ammonium en ajustant le pH entre 2 et 3 par l'adjonction d'ammoniaque ou d'acide nitrique au besoin (nous discuterons plus loin des différentes valeurs de pH à obtenir au cours des diverses opérations). L'excès de sulfure d'ammonium peut être gênant pour la deuxième opération à cause de l'insolubilité du soufre qui peut éventuellement entraîner et masquer des traces de polonium. Un volume de 5 cm³ d'une solution de sulfure d'ammonium contenant 10 % de SH₂ a été utilisé pour chaque échantillon.

On continue à chauffer la solution pendant 1 h 30 à une température de 80 à 100 degrés et on la laisse reposer assez longtemps afin que la formation du précipité soit parfaite.

b-2 Précipitation des hydroxydes

En faisant passer la solution obtenue par l'opération précédente à travers un entonnoir en verre fritté de porosité 3, on récupère le précipité sur le filtre ; on y ajoute quelques centimètres cubes d'eau régale afin de dissoudre le précipité et on récupère la solution dans un tube de centrifugation, on lave le filtre plusieurs fois en ajoutant chaque fois une petite quantité d'eau régale. La solution doit être en même temps chauffée afin d'en diminuer le volume. On la dilue ensuite en rinçant à l'eau chaude l'entonnoir de verre fritté afin de récupérer toute trace de plomb et de polonium qui serait restée sur le filtre.

En maintenant la solution à une température de l'ordre de 60 degrés, on y ajoute de l'ammoniaque dilué goutte par goutte jusqu'à léger excès. On ajuste le pH à 9,5 et on maintient au chaud quelques temps pour obtenir une formation parfaite d'hydroxyde de polonium et de plomb.

b-3 Séparation du polonium

On centrifuge la solution précédente, on sépare le culot de centrifugation du surnageant. Après lavage du culot, on le dissout dans 15 à 20 cm³ d'acide nitrique 0,5 N ou d'acide acétique 3 N.

La séparation du polonium s'effectue en faisant tourner dans la solution une petite lame d'argent, dont l'une des faces est recouverte de vernis.

Le dépôt spontané du polonium sur l'argent est classique (HAISSINSKY 1946). Nous rappellerons ici que la vitesse du dépôt dépend de l'agitation de la solution, de l'aire de la lame, de la pureté et du volume de la solution, de la quantité du polonium, de la concentration de l'entraîneur et de certains autres facteurs. En particulier certaines impuretés peuvent annuler complètement ce dépôt, ainsi que nous le verrons un peu plus loin.

En ce qui concerne le dépôt des traces de polonium en présence de 30 mg de plomb sur une lame d'argent de 14^(*) mm de diamètre, les conditions favorables que nous avons trouvées expérimentalement sont les suivantes : volume de la solution 15 à 20 cm³, température ordinaire pour le milieu nitrique, mais au-dessus de 60° pour le milieu acétique, vitesse de rotation de la lame 200 à 300 tours par minute, durée de dépôt 3 heures. Dans ces conditions nous avons obtenu un rendement de dépôt de 99 %. Ces conditions ont été trouvées en partant de solutions d'activité connue de polonium (une dizaine de picocuries) et en effectuant plusieurs essais en faisant varier chacun des facteurs cités ci-dessus.

c) Rendement du traitement

Le polonium pouvant s'adsorber facilement sur les parois, et les particules en suspension, il est nécessaire d'une part d'acidifier l'échantillon, et d'autre part, d'éviter le plus possible les transvasements et les filtrations. Les échantillons d'eau de pluie ont été recueillis de façon à être

(*) Ce diamètre a été choisi pour avoir le meilleur rendement de détection des α dans le détecteur utilisé.

exempts de poussière (cf. Chapitre V) ceci nous évitant une première filtration. Au cours du traitement chimique nous nous sommes efforcé de réduire au maximum les opérations de filtrations et de transvasements, ce qui nous a amené, pour un traitement complet, à n'utiliser que trois récipients (y compris l'entonnoir).

En déterminant le rendement chimique à chaque stade nous avons cherché les conditions favorables pour avoir le meilleur rendement total possible. Dans ce but nous avons introduit de petites quantités (de l'ordre de 100 à 200 pCi) de polonium dans des échantillons de 2 litres d'eau de pluie chacun.

Le contrôle du rendement à chaque stade a été effectué après séparation du polonium et mesure de son activité.

Pour la précipitation des sulfures le pH a été choisi de façon à éviter le plus possible la coprecipitation des traces d'autres éléments, particulièrement le fer, qui existent dans l'eau de pluie. Ainsi la meilleure valeur du pH pour nos échantillons, qui contiennent 15 mg de plomb par litre, se situe entre 2 et 3.

Cette valeur est en bon accord avec le calcul par le produit de solubilité du sulfure de plomb.

Pour la précipitation des hydroxydes le pH favorable, suivant la courbe de précipitation de l'hydroxyde de plomb, et pour une concentration identique à celle de notre échantillon, se situe entre 8 et 12. On sait que ces valeurs peuvent être modifiées pour différentes raisons en particulier, ce qui est notre cas, en présence des ions Cl^- (CHARLOT 1961).

Nous avons donc abaissé la concentration de ces ions en diminuant la quantité d'eau régale utilisée dans l'opération précédente. D'autre part il n'est pas évident que ces valeurs de pH soient convenables pour la précipitation de l'hydroxyde de polonium. C'est pourquoi nous avons effectué plusieurs essais sur des échantillons d'activités identiques mais avec différentes valeurs de pH et dans différentes conditions de température. Les résultats indiquent que la formation d'hydroxyde de plomb et d'hydroxyde de polonium, dans les conditions de nos expériences, sera parfaite pour une valeur de pH aux alentours de 9,5 et à une température voisine de 60 degrés.

Malgré les valeurs choisies pour le pH, il arrive de temps en temps que la disparition des ions ferriques soit incomplète. Ces ions noircissent alors la lame d'argent et inhibent le dépôt de polonium. Cet effet se manifeste à partir de concentrations en ions ferriques dépassant $5 \cdot 10^{-4}$ M ; le dépôt est encore inférieur à 5 % dans une solution ferrique 10^{-2} M (HAISSINSKY 1961).

Tenant compte des conditions de l'expérience, il est délicat d'annihiler cet effet. Nous avons essayé de réduire les ions ferriques en ions ferreux de différentes façons. L'adjonction d'un milligramme de chlorhydrate d'hydroxylamine à la solution a été satisfaisante. Dans ce cas, le dépôt doit être fait en milieu acétique 3 N à une température supérieure à 60°.

Pour vérifier le rendement total de la méthode, des traitements ont été faits sur des échantillons de 2 litres l'eau bidistillée et très faiblement active en polonium (de l'ordre d'un pico-curie). Dans tous les cas, le rendement dépassait 80 % et variait entre 80 et 84 %.

En conclusion, par cette méthode d'analyse on arrive à extraire au moins 80 % du polonium des échantillons d'eau provenant de la pluie et de la fusion de glaces polaires, et présentant des concentrations de l'ordre de quelques centaines de milliers d'atomes par litre. La limite des mesures significatives, en tenant compte des impuretés de plomb 210 qui existent dans les produits chimiques, est de 0,05 dpm par échantillon ce qui permet de mesurer le plomb 210 par l'intermédiaire du polonium 210 avec une sensibilité très nettement supérieure à celles obtenues précédemment (PICCIOTTO 1964).

CHAPITRE V

CONCENTRATION DU PLOMB ET DU POLONIUM 210 DANS L'EAU DE PLUIE APPLICATION A L'ESTIMATION DU TAUX DE NETTOYAGE DES AÉROSOLS DANS LA TROPOSPHÈRE

I - METHODES DE PRELEVEMENT ET RESULTATS DES MESURES SUR L'EAU DE PLUIE

Les échantillons d'eau de pluie ont été collectés à Gif-sur-Yvette à environ 25 km au Sud de Paris. Nous avons utilisé deux bacs ovales identiques, en polythène, ayant chacun une surface de collection de 4500 cm² et une hauteur de 40 cm. Chaque bac a été nettoyé et rincé à l'eau distillée, le dernier rinçage a été fait avec de l'eau bidistillée acidifiée à l'acide nitrique. Pour éviter la contamination par les retombées sèches, les bacs n'étaient mis à l'extérieur que lorsqu'il pleuvait de façon continue et ils étaient rentrés dès que la pluie cessait.

Les échantillons ont été acidifiés avec de l'acide nitrique de façon que l'acidité soit 0,05 N, puis versés directement dans des béchers préalablement lavés et rincés à l'eau bidistillée acidifiée. Après avoir pesé les échantillons, on y ajoutait l'entraîneur (15 mg de plomb par litre).

Les analyses chimiques ont été effectuées très rapidement après la collection, suivant la méthode précédemment décrite.

Deux analyses sur deux portions d'un même échantillon nous ont permis de vérifier la reproductibilité de la mesure. D'autre part, deux analyses sur deux échantillons différents mais récoltés le même jour (1er octobre 1963) ont donné le même résultat et nous ont amené à penser que les concentrations en polonium dans la pluie restent peut-être constantes au cours d'une même journée.

Après extraction du polonium on gardait chaque échantillon pendant plusieurs mois (environ 7 mois). De nouvelles extractions et mesures de polonium 210 sur les mêmes échantillons ont alors été faites. Nous avons calculé à partir de ces mesures la concentration de plomb 210 dans chaque échantillon.

La mesure d'activité du polonium 210 a été faite à l'aide d'un détecteur à semi-conducteur "Ortec" de surface 2,5 cm², ayant un mouvement propre bien inférieur à 0,01 coup par minute dans une bande d'énergie entre 4 MeV et 5,5 MeV. Le rendement de comptage est 25 %.

Le même traitement a été appliqué à deux litres d'eau bidistillée afin de mesurer l'activité du polonium 210 provenant des impuretés des produits chimiques utilisés lors des analyses.

Le tableau I, indique les résultats de toutes ces mesures.

On constate que les teneurs de l'eau de pluie en plomb 210 et en polonium 210 sont restées sensiblement constantes, aux alentours respectivement de 5,3 et 0,58 dpm/litre, à Gif, entre le 15 septembre 1963 et le 12 avril 1964. Ces résultats sont très voisins de ceux qui avaient été obtenus par BURTON et STEWART dans le Sud des Iles Britanniques (1960), LEHMANN et SITTKUS en Allemagne (1959), BARANOV dans la région de Moscou (1962) et BLIFFORD à Washington (1952).

II - INTERPRETATIONS DES RESULTATS

Deux faits saillants ressortent de nos résultats, et de leur comparaison aux résultats publiés dans la littérature :

1/ Dans une région assez vaste, telle que la partie de l'Europe située entre 45 et 55° de latitude Nord, la concentration du plomb 210 dans l'eau de pluie est grossièrement constante.

Tableau I

Analyse de RaF et RaD dans l'eau de pluie

Date de collection	Volume en litre	Concent. en Po 210 dpm/litre	Concent. en Pb 210 dpm/litre	Rapport des concent. Po/Pb	Détail
	2 (eau)	0,007	0,007		eau bidis-tillée
15-27 Sep. 63	2 (pluie)	0,64	6	0,10	2 mesures indépendantes sur le même prélèvement
15-27 Sep. 63	2 "	0,62	6	0,10	
1 Oct. 63	2 "	0,52	4,2	0,12	matin
1 Oct. 63	2 "	0,46	3,7	0,13	après-midi
15-20 Oct. 63	1,7 "	0,6	5,2	0,11	
21-25 Oct. 63	2 "	0,67	5,5	0,12	
5- 11 Nov. 63	2 "	0,75	6	0,12	
13 Nov. 63	2 "	0,4	4,2	0,09	
25-27 Nov. 63	2 "	0,4	4	0,10	
17-18 Déc. 63	2 "	0,58	4,4	0,13	
2- 10 Jan. 64	2 "	0,82	6	0,13	
3- 14 Fév. 64	2 "	0,58	7,2	0,08	
17-19 Fév. 64	2 "	0,6	5,5	0,11	
24 Fév. 64	2 "	0,9	8	0,11	
12 Mars 64	2 "	0,4	6	0,07	
13 Mars 64	2 "	0,56	5	0,11	
20 Mars 64	2 "	0,48	5	0,10	
12 Avril 64	2 "	0,47	3,4	0,14	
Moyenne		0,58	5,3	0,11	

2/ Il existe un déséquilibre important, de l'ordre d'un facteur 10, entre le plomb 210 et son produit de filiation le polonium 210.

La première de ces constatations traduit simplement le fait que la circulation générale de l'atmosphère, d'Ouest en Est aux latitudes considérées, est rapide devant les dimensions des zones où le dégagement du radon peut être considéré comme exceptionnel et également vis à vis du temps moyen de séjour des aérosols dans la troposphère. Rappelons que LAMBERT et POLIAN (1963), avaient estimé à 5 jours environ le temps nécessaire pour le transfert d'une masse d'air d'une région continentale à une région océanique, ce qui paraît en accord avec les observations précédentes.

Ajoutons que, comme nous l'avons mentionné, une partie du plomb 210 est certainement formée dans la stratosphère, par le radon qui a pu gagner cette zone. Comme les phénomènes de transferts de la stratosphère à la troposphère ne paraissent pas dépendre de la longitude, il est bien naturel de trouver, en ce qui concerne le plomb 210 formé dans la stratosphère, des concentrations constantes dans une bande de latitude donnée.

Au contraire, l'interprétation du déséquilibre entre les concentrations de plomb 210 et de polonium 210 exige une étude théorique complète de tout le comportement de ces nuclides dans l'atmosphère et plus particulièrement du nettoyage des aérosols atmosphériques, par voie humide, que traduit nécessairement leur présence dans l'eau des précipitations.

III - ETUDE DU NETTOYAGE DES AEROSOLS DE RADIUM D, E, ET F, PAR LES PRECIPITATIONS

Si des processus intenses de nettoyage n'intervenaient pas, un équilibre radioactif s'établirait au cours du temps, dans l'atmosphère considérée comme un volume fermé, entre le radon et ses descendants ; c'est à dire qu'en une unité de temps et dans une unité de volume un nombre égal d'atomes de radon et d'atomes de chacun de ses descendants seraient désintégrés. Ceci s'écrit :

$$N_{Rn} \lambda_{Rn} = N_A \lambda_A = \dots\dots = N_D \lambda_D = N_E \lambda_E = N_F \lambda_F \quad (1)$$

où N est le nombre d'atomes par unité de volume et λ la constante de désintégration des nuclides correspondants. Pour qu'un tel équilibre s'établisse entre le radon et ses descendants, jusqu'au radium C', 2 à 3 heures seraient nécessaires, et quelques centaines d'années jusqu'au radium D (à condition que l'introduction de radon dans l'atmosphère se fasse à flux constant).

En fait, le nettoyage de l'atmosphère limite le temps de séjour des aérosols dans la troposphère. Quelle que soit la loi de ce nettoyage, on peut définir un temps moyen de séjour des aérosols dans la troposphère, que nous appellerons τ , vis à vis du phénomène de nettoyage par les précipitations (c'est à dire en supposant que ce phénomène intervient seul). L'ordre de grandeur de ce temps, pour les aérosols contenant des produits radioactifs de longue vie, suivant différents auteurs varie entre 20 et 40 jours. Nous discuterons sur ces valeurs plus loin.

Ces phénomènes de nettoyage agissent doublement sur les concentrations de plomb, bismuth et polonium (radium D, E, F).

1/ en limitant la durée moyenne de leur séjour dans la troposphère ils empêchent les nuclides de longue période de parvenir à l'équilibre radioactif avec leur prédécesseur immédiat ;

2/ lorsque des atomes de plomb 210 sont éliminés de l'atmosphère par fixation sur le sol, leurs descendants restent hors de l'atmosphère alors que l'élimination d'un atome de polonium, par exemple, ne rejaillit évidemment pas sur l'atome de plomb qui lui a donné naissance. Statistiquement cela se traduit par un abaissement de la concentration atmosphérique des nuclides descendants (bismuth et polonium) par rapport à celle du nuclide initial (plomb), même pour un mélange en équilibre radioactif au moment de son injection dans la troposphère, ce qui est probablement le cas pour la fraction des radium D, E et F qui ont été formés dans la stratosphère.

Seul ce tout dernier cas a été traité par les différents auteurs qui ont étudié le problème du plomb 210 dans les précipitations. Mathématiquement, on est obligé de supposer que le processus de nettoyage est d'autant plus intense que la concentration du nuclide est plus élevée, ce qui conduit à une loi de disparition exponentielle, analogue aux phénomènes de radioactivité, et caractérisée par sa constante σ , égale à l'inverse du temps moyen de séjour τ :

$$\sigma = \frac{1}{\tau} \quad (2)$$

Les deux processus de disparition des aérosols (radioactivité et nettoyage) s'ajoutent alors pour faire apparaître une nouvelle concentration d'équilibre définie par une équation analogue à l'équation (1) et qui s'écrit dans le cas des radium D, E et F :

$$\begin{cases} N_D \lambda_D = N_E (\lambda_E + \sigma) \\ N_E \lambda_E = N_F (\lambda_F + \sigma) \end{cases} \quad (3)$$

D'où l'on tire le rapport des activités des radium D et F :

$$\frac{\lambda_F N_F}{\lambda_D N_D} = \frac{\lambda_E \lambda_F}{(\lambda_E + \sigma) (\lambda_F + \sigma)} \quad (4)$$

Comme nous l'avons indiqué, cette formule n'est valable que pour les fractions de radium D, E et F d'origine stratosphérique. En ce qui concerne les radium D, E et F d'origine troposphérique, le calcul sera très différent. Voici comment nous l'avons conduit (LAMBERT et NEZAMI 1965).

On admet que la concentration atmosphérique du radium D reste constante, ce qui résulte de la constance moyenne de la concentration du radon, père du radium D, ainsi que des processus de disparition de ce dernier. Puis on examine la croissance des produits de filiation du radium D à partir d'une concentration initiale nulle, et au bout d'un temps τ égal au temps moyen de séjour des aérosols dans la troposphère.

Ce temps τ étant voisin de 30 jours, on peut admettre que la concentration d'équilibre est atteinte pour le radium E ce qui conduit à une équation du type des équations (3) :

$$\lambda_D N_D = (\lambda_E + \sigma) N_E$$

Pour le RaF on peut calculer les variations de concentration à un instant t :

$$\frac{dN_F}{dt} = N_E \lambda_E - (\lambda_F + \sigma) N_F \quad (5)$$

avec la condition initiale :

$$(N_F)_{t=0} = 0$$

La solution de cette équation conduit au temps $t = \tau$ à la concentration du RaF d'origine troposphérique (que nous noterons désormais N_{FT}) :

$$N_{FT} = \frac{N_{DT} \lambda_D \lambda_E}{(\lambda_E + \sigma) (\lambda_F + \sigma)} [1 - e^{-(\lambda_F + \sigma)\tau}] \quad (6)$$

La concentration de RaF d'origine stratosphérique (noté N_{FS}) s'obtient à partir de l'équation (4) :

$$N_{FS} = N_{DS} \frac{\lambda_E \lambda_D}{(\lambda_E + \sigma) (\lambda_F + \sigma)} \quad (7)$$

Les concentrations totales des radium D et F s'obtiennent en faisant la somme des fractions d'origines stratosphérique et troposphérique, soit en posant :

$$N_{DS} = f_S N_D \text{ et } N_{DT} = f_T N_D \text{ avec } f_S + f_T = 1.$$

On a donc finalement :

$$N_F = \frac{N_D \lambda_D \lambda_E}{(\lambda_E + \sigma) (\lambda_F + \sigma)} [1 - f_T e^{-(\lambda_F + \sigma)\tau}] \quad (8)$$

et en tenant compte de $\sigma\tau = 1$, le rapport des activités spécifiques des radium F et D devient :

$$p = \frac{\lambda_F N_F}{\lambda_D N_D} = \frac{\lambda_E \lambda_F}{(\lambda_E + \sigma) (\lambda_F + \sigma)} \left[1 - f_T e^{-(1 + \frac{\lambda_F}{\sigma})} \right]$$

Le terme entre crochets peut être développé en série, $\frac{\lambda_F}{\sigma}$ étant petit par rapport à un (environ 0,2) d'où :

$$p = \frac{\lambda_E \lambda_F}{(\lambda_E + \sigma) (\lambda_F + \sigma)} \left[1 - \frac{f_T}{e} \left(1 - \frac{\lambda_F}{\sigma} \right) \right] \quad (9)$$

Application : détermination du temps moyen de séjour dans la troposphère.

Si nous considérons l'équation (9) on voit que seuls $\tau = 1/\sigma$ et f_T sont inconnus, p étant accessible à l'expérience : nos mesures ont déterminé $p = 0,11$ (voir tableau 1).

Il est extrêmement difficile d'estimer la valeur de f_T qui, en fait, dépend de l'altitude considérée. Au niveau du sol f_T est certainement voisin de 1, et f_T est pratiquement nul dans la stratosphère. La valeur à prendre en considération est celle qui correspond à l'altitude moyenne de formation des nuages c'est à dire au voisinage de 4 km.

La comparaison des courbes de répartition des concentrations de plomb 210 et des aérosols radioactifs artificiels en fonction de l'altitude, faite par BURTON et STEWART (1960), permet d'estimer la valeur de f_T aux différentes altitudes. Cette estimation repose sur le fait qu'à la date d'établissement des courbes, la totalité de la radioactivité artificielle était d'origine stratosphérique, et que la fraction d'origine stratosphérique du plomb 210 aurait dû présenter une répartition identique en fonction de l'altitude. On trouve ainsi qu'aux altitudes où les nuages sont susceptibles de se former, f_T peut varier de 0,5 à 0,95 ce qui représente pour le terme entre crochets des valeurs comprises entre 0,68 et 0,85. On peut ainsi déterminer des valeurs du temps moyen de séjour des aérosols dans la troposphère, comprises entre 33 et 42 jours. Notons que l'application de l'équation (4), valable uniquement pour la fraction stratosphérique, aurait conduit à une valeur trop petite de ce temps, égale à 29 jours.

Dans le tableau II on trouve les estimations de la valeur de τ , obtenues par un certain nombre d'auteurs en différents points géographiques en appliquant l'équation simplifiée de BURTON et STEWART. Comme on voit les différentes valeurs de τ peuvent se répartir en deux groupes : le

Tableau II

Estimation du temps moyen de résidence d'un aérosol radioactif dans la troposphère

Lieux de mesures	Méthodes	Valeur moyenne de τ jours	Limite des variations	Réf.
Washington	A_{RaC}/A_{RaD} (couche d'air au niveau du sol)	10,5	- -	1
Heidelberg (Allemagne)	Rapport de concentrations des isotopes de longue et courte vie sur un filtre	4,1	- -	2
Freiburg (Allemagne)	A_{RaC}/A_{RaD} (couche d'air au sol)	1,5	3,0- 0,8	3
	A_{RaD}/A_{RaF} (" " ")	14	36 - 8	3
	A_{RaD}/A_{RaF} (précipitation) „	33	100- 10	3
Grande Bretagne	A_{RaD}/A_{RaF} (couche d'air au sol)	22	- -	4
	A_{RaD}/A_{RaF} (air à l'altitude de 9 km)	40	- -	4
	A_{RaD}/A_{RaF} (précipitation)	29	- -	4
Gif s/Yvette France	A_{RaD}/A_{RaF} (précipitation)	30(*)		
Elbrouz U. R. S. S.	Rapport de la concentration des produits descendants du Rn tombant avec les précipitations à leur concentration totale dans l'air	2		5
Arkansas U. S. A.	A_{RaD}/A_{RaE} (précipitation)	6,6	3,8-22,7	6

(*) Résultat obtenu dans le présent travail, en utilisant l'équation de BURTON et STEWART.

L'application de notre équation conduit à des valeurs comprises entre 33 et 42 jours.

1/ BLIFFORD (1952) - 2/ HAXEL (1955) - 3/ LEHMANN (1959) - 4/ BURTON (1960) - 5/ MALAKHOV (1962) - 6/ FRY (1962).

premier groupe comprenant des valeurs de τ de l'ordre de plusieurs jours, et le second des valeurs de τ de plusieurs dizaines de jours. Nos valeurs appartiennent au second groupe.

Le désaccord apparent peut être expliqué de la façon suivante : dans la couche inférieure de la troposphère (3 à 5 km) la formation des nuages et la retombée des précipitations créent des conditions de nettoyage intensif des aérosols auxquelles correspond un temps de résidence court. D'autre part, pour que les aérosols radioactifs localisés dans la troposphère supérieure atteignent cette couche, il faut un certain temps. Par conséquent, la valeur de τ de l'ordre de plusieurs jours représente le taux de nettoyage de la basse troposphère, et celle de l'ordre de plusieurs dizaines de jours représente le taux de nettoyage de la totalité de la troposphère.

KAROL (1963) au cours d'une étude assez détaillée où il tient compte du rôle du mélange par turbulence verticale a donné une série de courbes, en coordonnées logarithmiques représentant la variation de σ en fonction du rapport des activités $Ra F/Ra D$ atmosphériques pour différentes valeurs de K_z (coefficient de diffusion turbulente verticale dans la troposphère).

Il estime que parmi ces courbes celle qui correspond à $K_z = 0$ coïncide assez bien avec celle qui est tracée à partir de l'équation d'équilibre "non radioactif" (équation 4). On voit figure (5-1) cette courbe en tiretés, et également que la coïncidence est nettement meilleure si l'on trace la courbe à partir de l'équation (9) c'est à dire après l'introduction de notre facteur de correction (courbe en pointillés).

Remarquons que les résultats qui précèdent ne sont valables que pour les parties moyennes et supérieures de la troposphère, car dans les plus basses couches de l'atmosphère une fraction importante du nettoyage doit s'effectuer sous forme de "retombées sèches". Nous en parlerons dans le chapitre suivant.

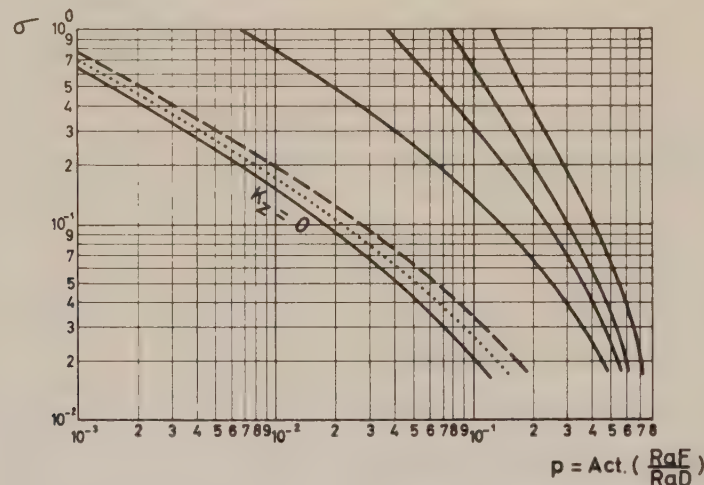


Fig. 5.1. Variations du taux de nettoyage σ en fonction du rapport des activités atmosphériques RaF/RaD :
 ———— Courbes de KAROL' pour différentes valeurs du coefficient de diffusion K_z
 - - - - - Courbe tracée à partir de l'équation 4 (chap. V)
 Courbe tracée à partir de l'équation 9 (chap. V).

CHAPITRE VI

RETOMBÉES SÈCHES DE PLOMB 210

I - INTERET DE L'ETUDE DES RETOMBEES SECHES DE PLOMB 210

Le processus de nettoyage des aérosols contenant les produits radioactifs naturels dans l'atmosphère a été discuté par de nombreux auteurs (STYRO 1955, GREENFIELD 1957, MALAKHOV et coll. 1962, ZIMIN 1962).

Ces auteurs ont principalement étudié l'entraînement de ces aérosols par les précipitations et par les nuages. STYRO (1959) distingue deux parties dans ces retombées à la surface du Globe : une partie, la plus importante, provient de la capture des aérosols contenant les produits radioactifs naturels par les nuages, comme le suggère FACY (1958), tandis que le nettoyage par les gouttes d'eau en train de tomber peut être considéré comme généralement négligeable.

De plus, une partie des aérosols radioactifs submicroniques qui sont formés (ou transportés) dans la plus basse couche de l'atmosphère ne seront pas nettoyés par la pluie ou la neige, puisque la collection de ces poussières fines se produit au niveau des formations nuageuses. Par contre, des études montrent que tous les obstacles naturels et particulièrement la végétation contribuent à collecter les aérosols atmosphériques sur lesquels se sont déposés les descendants du radon (LAMBERT 1963, FONTAN 1964). L'effet se produit également à la surface du sol, ou d'un plan d'eau.

Ces différentes observations permettent de conclure que, ce nettoyage supplémentaire qu'on appelle "retombées sèches" est effectué par diffusion, ou par impact, des aérosols au voisinage des obstacles placés dans un courant d'air naturel, y compris la surface du sol et des océans.

Le processus du dépôt sec dans le cas des aérosols radioactifs contenant des débris des explosions nucléaires a été déjà étudié (Anonyme Rapport ONU 1962). Une étude particulièrement détaillée sur les divers mécanismes intervenant au cours de ce dépôt a été effectuée par LAMBERT (1963). D'après cet auteur les retombées sèches représentent une partie importante du dépôt radioactif d'origine artificielle. Il a chiffré cette contribution à environ 20 % du dépôt total dans le cas des aérosols injectés dans la troposphère à partir de la stratosphère et à 50 % environ dans le cas d'une contamination troposphérique directe.

Dans le cas des aérosols responsables de la radioactivité naturelle, on ne peut, pour diverses raisons, utiliser ces estimations de la contribution des retombées sèches à la retombée totale :

Premièrement : parce que les aérosols contenant les produits de fission à l'exception de ceux dus à des injections récentes dans la troposphère, proviennent en totalité de la stratosphère. Ils subissent alors différents processus de nettoyage et de capture au cours de leur long voyage avant leur collection sous forme de retombées sèches, tandis qu'une fraction importante des produits radioactifs naturels qui sont formés dans les plus basses couches de l'atmosphère sont directement capturés par le mécanisme de retombées sèches.

Deuxièmement : parce que presque 80 % des aérosols contenant les produits descendants du radon ont des dimensions allant de 0,002 à 0,035 micron, 10 à 20 pour cent seulement de ces produits étant associés à des aérosols de plus grandes dimensions (BURKE 1950, STIERSTADT 1960, MAKHON'KO 1962).

Selon WILKENING (1952), pas plus de 10 % de la somme totale de ces aérosols de produits naturels ont des dimensions supérieures à 0,5 micron.

Par contre, les aérosols contenant des débris d'explosions nucléaires ont de beaucoup plus grandes dimensions. Une étude expérimentale faite par SISEFSKY (1961) sur les débris des tests nucléaires atmosphériques, effectués par l'U.R.S.S. en septembre et octobre 1958, montre que les

dimensions de ces débris à l'âge de 120 jours, sont comprises entre 0,2 et 5 microns. Bien que ces dimensions diminuent légèrement au cours du vieillissement de ces débris, on voit quand même qu'il y a une très grande différence entre les dimensions des deux sortes d'aérosols. Cette différence de granulométrie suscite des mécanismes de captures différentes. En effet, une étude théorique (ZIMIN 1962) sur les mécanismes de capture des aérosols atmosphériques par les nuages et les précipitations montre que la capture des particules fines (ayant des dimensions de moins de 0,1 micron) s'effectue essentiellement par diffusion, tandis que pour les particules de grandes tailles (plus grandes qu'un micron), la capture par diffusion est négligeable. Pour de telles particules la capture a lieu plutôt par effet d'inertie.

Dans le cas du plomb 210 on ne dispose pas de données suffisantes pour estimer la granulométrie de ces aérosols ; on peut seulement la supposer intermédiaire entre les valeurs extrêmes que nous venons de mentionner.

Ces différentes observations nous obligent donc à mesurer directement les retombées sèches de plomb 210.

II - COLLECTION DES RETOMBEES SECHES

La collection des retombées sèches a été effectuée à l'aide d'un appareil appelé "CRAPAL" (Collecteur de Radioactivité Artificielle des Précipitations Atmosphériques Liquides), mis au point par C. JEHANNO et J. LABEYRIE (1958). Avec ces appareils qui servent à collecter aussi bien les retombées sèches que les précipitations, un réseau de stations dans le monde entier a été équipé.

Un CRAPAL est constitué d'une sorte de pluviomètre dont l'ouverture est recouverte par une double épaisseur de gaze chirurgicale. Il est surmonté d'une couronne cylindrique de 35,7 cm de diamètre, et de 10 cm de hauteur (fig. 6-1). La gaze est destinée à recueillir les retombées sèches ainsi que la plus grande partie des poussières insolubles dans l'eau de pluie. La mesure de l'activité des poussières recueillies par la gaze les jours ou aucune précipitation ne s'est produite nous permet de déterminer une valeur quotidienne moyenne pour les retombées sèches.

LAMBERT (1963) a montré que la collection du dépôt sec sur le CRAPAL s'effectuait non pas par décantation des aérosols sous l'effet de la gravité, mais par microturbulence au sein des filets d'air qui traversent la gaze. Ce processus est donc assez semblable à la filtration naturelle produite par la végétation sur les masses d'air en mouvement.

D'autre part ce même auteur a montré que le CRAPAL était représentatif des retombées radioactives dans une région donnée en se basant sur les considérations suivantes :

- Premièrement, les fluctuations constatées qui se produisent entre les résultats donnés par deux appareils identiques voisins sont purement aléatoires. Ces fluctuations sont donc très bien compensées lorsqu'un nombre suffisant de mesures est effectué.
- Deuxièmement, un CRAPAL situé au centre d'une région donne au bout d'une période de temps suffisamment longue des résultats très voisins de la moyenne arithmétique des résultats donnés par les instruments placés autour de cette région.
- Troisièmement, les chiffres obtenus au moyen du CRAPAL sont du même ordre de grandeur que ceux qui résultent de l'étude directe sur le terrain de l'accumulation de débris radioactifs artificiels (lac Léman et stations américaines de la région de New-York) (CHESSELET et al. 1963 - Rapport H.A.S.L.). Le tableau I montre l'efficacité relative de divers collecteurs de retombées sèches.

Cependant, dans le cas des surfaces océaniques, les études récemment publiées (NGUYEN et al. 1963, SHVEDOV et al. 1963, CHESSELET et al. 1965), montrent que le rapport entre le taux des retombées sur les océans, obtenu à partir des mesures de l'activité de l'eau de mer, et celui des retombées continentales, semble toujours supérieur à un. Certains auteurs expliquent cette disparité, soit par la différence des conditions météorologiques océaniques et continentales, particulièrement les différences de comportement des masses d'air au-dessus des océans et au-dessus des continents, soit par le mode de collection des retombées continentales ; l'environnement des collecteurs pouvant avoir un effet de filtration de l'air (végétation, courant tourbillonnant) avant que celui-ci n'atteigne le collecteur.



Fig. 6.1. CRAPAL.

Tableau I

Efficacité relative de différents collecteurs vis à vis
des retombées sèches (LAMBERT 1963)

Collecteurs	Efficacité relative
CRAPAL ordinaire	100 % (*)
CRAPAL avec couronne de 60 cm	62 %
CRAPAL démunie de gaze	54 %
CRAPAL où la gaze est rempla- cée par un plan d'eau	42 %

(*) par hypothèse.

En conclusion, la similitude trouvée entre les valeurs des collections par CRAPAL et par les grandes surfaces terrestres nous permet d'estimer que ce collecteur est bien représentatif des retombées qui se produisent sur les continents, mais nous ignorons absolument quel coefficient de correction il faut lui apporter dans les cas des océans. En effet, on a fait extrêmement peu de mesures de retombées radioactives au-dessus des océans. Ce coefficient pourrait atteindre un facteur 2 à 7.

Toutefois les océans représentent environ 70 % de la surface du Globe. Bien que le bilan du plomb 210 que nous établirons par la suite comporte donc une incertitude, c'est le meilleur que nous puissions établir dans le cadre des données disponibles à l'heure actuelle.

Au cours de ce travail, nous avons utilisé la collection de retombées sèches par le CRAPAL, ce qui nous a permis, par ailleurs, d'utiliser des collections antérieures à notre travail. En effet, afin de déterminer l'importance de ces retombées sèches dans le cas du Plomb 210 nous avons repris en 1964 les échantillons qui avaient déjà été utilisés par LAMBERT (1963) pour son étude sur la radioactivité artificielle de ces retombées :

1/ parce que les mesures du taux de nettoyage des aérosols radioactifs artificiels avaient déjà été effectuées sur ces échantillons ;

2/ parce que le traitement par calcination des gazes des collecteurs CRAPAL a été effectué en 1962 et que, désirant mesurer en 1964 le plomb 210 par l'intermédiaire du polonium 210, ces deux années de délai étaient suffisantes pour que le polonium atteigne l'équilibre avec le plomb 210.

Traitement des échantillons de retombées sèches

Nous venons de dire que les gazes ont été calcinées après collection des retombées sèches. Le poids des résidus de calcination varie de 100 à 150 mg. Les mesures de la radioactivité artificielle sur les retombées sèches ont donc pu être faites directement sur ces résidus au moyen d'un compteur β global (LAMBERT 1963).

Dans le cas de la mesure d'activité de ces échantillons en plomb 210 par l'intermédiaire du polonium 210, la mesure directe sur cette quantité de matière n'est pas possible. En effet, le parcours moyen des particules α émises par le polonium 210 étant de 4 mg/cm², la majorité de ces particules seraient absorbées dans l'épaisseur de la source elle-même. Pour mesurer ce nuclide sous forme de source spectrographique, on doit donc avoir recours à un traitement chimique préalable.

L'utilisation des détecteurs à semi-conducteur nécessite la préparation de sources de petites dimensions (de l'ordre de grandeur d'un centimètre carré). En raison de la présence dans chaque échantillon de diverses matières étrangères, minérales ou organiques, il est extrêmement difficile de faire un traitement chimique convenable avec un rendement satisfaisant. Par contre l'utilisation d'une chambre à grille comme détecteur nous permet d'utiliser des sources de plusieurs dizaines de centimètres carrés de surface, ce qui facilite l'exécution d'un traitement chimique simple et de bon rendement n'allant pas jusqu'à l'isolement complet du polonium. Par ailleurs, l'activité mesurée étant bien supérieure au taux de mouvement propre de l'appareil, la précision des mesures sera satisfaisante (dans le cas des mesures citées plus haut sur 2 litres d'eau de pluie, l'activité était très faible et nécessitait donc une séparation chimique totale du polonium justifiant l'utilisation du détecteur à semi-conducteur).

Le traitement chimique simplifié consiste à effectuer les opérations suivantes :

1/ Attaques répétées de l'échantillon par l'acide nitrique puis par l'eau oxygénée afin de décomposer les matières organiques contenues dans l'échantillon.

2/ Attaque du résidu de l'opération précédente par l'acide fluorhydrique pour éliminer sous forme de SiF_4 les particules de silice, provenant des sables collectés par la gaze.

3/ La solution obtenue est déposée sur une plaque de platine de 48 cm² et évaporée, en ajoutant quelques gouttes d'une solution alcoolisée de collodion afin de faciliter l'adhésion du dépôt sur la plaque. Un second procédé consiste à extraire de la solution la plus grande partie du polonium par électrodéposition spontanée sur une lame d'argent. Le reste de la solution est ensuite déposé sur une plaque de platine comme précédemment.

Ce traitement réduit la quantité de chaque échantillon à 10 mg environ correspondant à une couche de dépôt d'environ 0,2 mg/cm² ce qui est bien inférieur au parcours des particules α du polonium 210.

III - RESULTATS DES MESURES

Les mesures d'activité α ont été effectuées à l'aide d'une chambre à grille dont le mouvement propre est de 0,3 coup par minute et le rendement géométrique voisin de 50 %(*).

En fait, la présence de plomb 210 dans les impuretés contenues dans les différents réactifs nous amène à effectuer une correction supplémentaire qui dépend de la quantité de réactif employée et qui varie entre 0,1 et 0,4 cpm. Les résultats figurant dans le tableau II tiennent compte de cette correction.

Les résultats des mesures sont indiqués au tableau II. On voit qu'entre septembre 1961 et août 1962, on a collecté au total pendant 36 jours 273 d.p.m. de plomb 210/m² soit une moyenne de 7,6 dpm par m² et par jour. On a reporté ces résultats sur le tableau III ainsi que la concentration atmosphérique moyenne du plomb 210 les mêmes jours. A l'époque, cette concentration avait été mesurée en filtrant un volume connu d'air (environ 250 m³) à travers un filtre de cellulose. On avait attendu ensuite, un peu plus d'un an, que le plomb ait donné naissance à une quantité de polonium en équilibre radioactif, et l'on avait mesuré l'activité α de ce dernier. L'étalement était effectué grâce à des mesures alternées α et β , faites sur le dépôt actif à courte période du radon, au moyen d'un compteur α identique, et d'un compteur β de rendement connu. Les rendements de comptage α ainsi obtenus, sans aucune séparation chimique, étaient voisins de 10 %. Le dépôt actif du radon à courte période filtré en même temps que le plomb 210 apportait une contribution négligeable à l'activité α retardée. Bien que moins sensibles ces mesures ont permis d'établir les valeurs indiquées dans la 3ème colonne du tableau III.

Si l'on divise la quantité du plomb 210 recueillie sur 1 m² de sol en une journée, par sa concentration atmosphérique, on obtient un nombre ayant les dimensions d'une longueur et qui représente la hauteur de l'atmosphère "nettoyée" en une journée, ou plus exactement la hauteur d'atmosphère dans laquelle serait contenu le plomb tombé en un jour en absence de précipitations de pluie ou de neige. A titre de comparaison, on a fait figurer sur le tableau III (5ème colonne) les résultats obtenus, les mêmes jours pour les hauteurs nettoyées déduites des mesures de radioactivité artificielle. On voit qu'il n'existe pas de corrélation absolue entre les hauteurs journalières de nettoyage calculées dans le cas du plomb 210 ou dans celui des aérosols radioactifs artificiels, bien qu'elles soient du même ordre de grandeur. Par contre, il semble bien sur la fig. 6-2, que les paramètres, essentiellement météorologiques, qui favorisent les retombées sèches agissent de façon à peu près semblable dans les deux cas. Toutefois, la hauteur de nettoyage de l'atmosphère est en général un peu plus faible dans le cas du plomb 210, ce qui peut résulter :

1/ d'une granulométrie différente de ces aérosols,

ou 2/ plutôt du fait que les concentrations ont été mesurées au voisinage du sol, ce qui donne une valeur maximale pour le plomb puisqu'il est engendré par le radon qui est plus abondant près du sol, alors que les concentrations en produits radioactifs artificiels sont sensiblement constantes sur toute la hauteur considérée.

(*) Chambre à grille "Intertechnique" Type S₁₄ - Licence C.E.A.

Tableau II

Retombées sèches de plomb 210 collectées par un CRAPAL de surface
0,1 m² à SACLAY

Dates des prélèvements	Dates des mesures	Retombées sèches de plomb 210 (dpm/m ²)
8-11/IX/61	II/VI/64	12
11-13	5/VI/64	14
14-15	18/VI/64	16
15-20	24/VI/64	6
20-21	24/VI/64	9
21-25	9/VI/64	21
5-6/III/62	12/V/64	15
6-7	13/V/64	8
7-8	20/V/64	15
9-12	28/V/64	12
12-13	2/VI/64	10
13-15	9/VI/64	14
16-19	1/VI/64	19
19-21	4/VI/64	21
21-23	5/VI/64	23
26-27	4/VI/64	17
21-25/VI/62	16/VI/64	14
25-26	11/VI/64	10
3-4/VII/62	17/VI/64	5
23-24	10/VI/64	12
Total : 273 dpm/m ² en 36 jours..... 7,6 dpm/m ² /jour		

Tableau III

Comparaison des concentrations en plomb 210 dans l'atmosphère et
les retombées sèches

Dates des prélèvements	Retombées sèches de plomb 210 (dpm/m ²)	Concentration atmosphérique moyenne du plomb 210 (dpm/m ³)	Hauteur de net- toyage de l'at- mosphère (plomb 210) m/jour	Hauteur de net- toyage de l'at- mosphère (ra- dioactivité ar- tificielle β) m/jour
8-11/IX/61	12	0,028	143	-
11-13	14	0,015	466	-
14-15	16	0,013	1 230	2 255
19-20	6	0,056	107	337
20-21	9	0,022	409	139
21-25	21	0,106	50	243
5-6/III/62	15	0,017	882	2 834
6-7	8	0,034	235	979
7-8	15	0,022	682	1 233
9-12	12	0,010	400	1 399
12-13	10	-	-	555
13-15	14	0,013	538	622
16-19	19	0,017	372	129
19-21	21	0,033	318	394
21-23	23	0,017	676	740
26-27	17	-	-	1 624
21-25/VI/62	14	-	-	144
25-26	10	-	-	547
3-4/VII/62	5	-	-	1 027
23-24	12	-	-	810

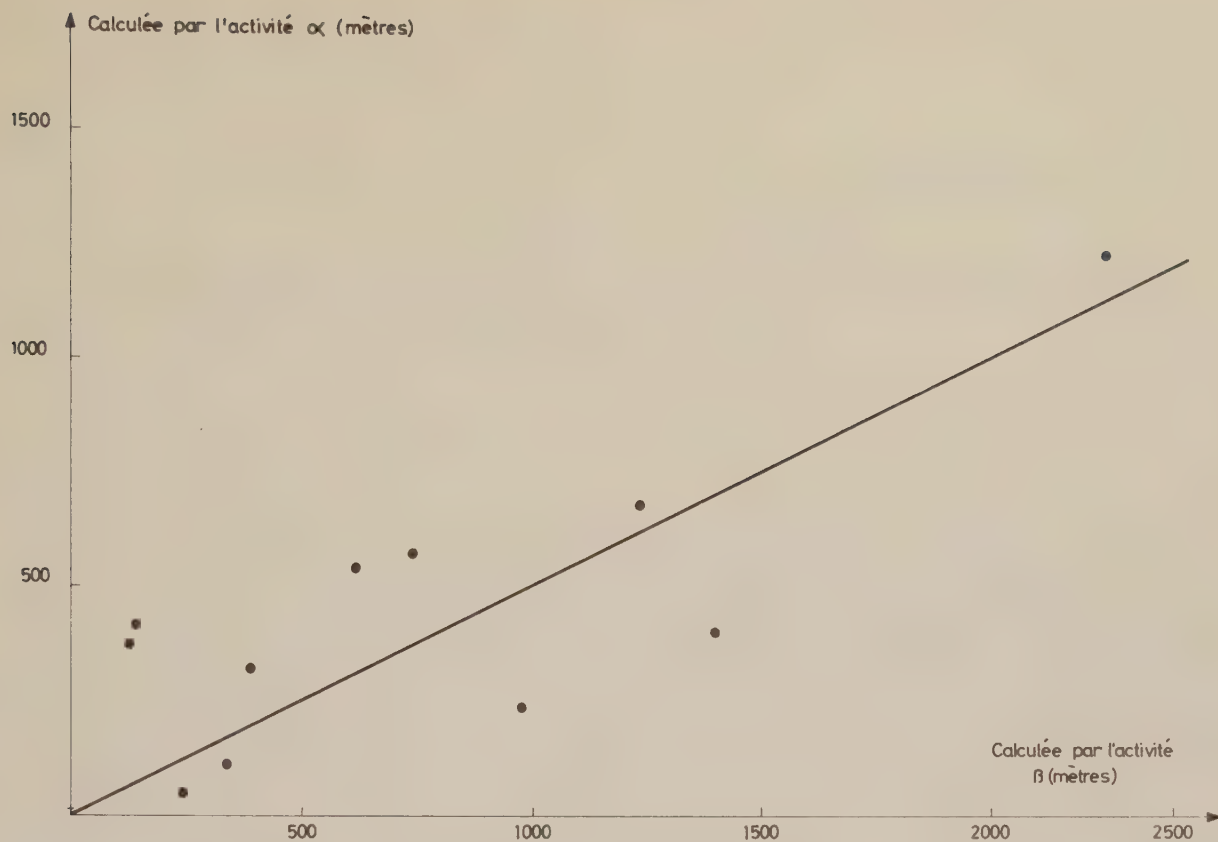


Fig. 6.2. Hauteur quotidienne de nettoyage de l'atmosphère.

IV - CONCLUSION

Les résultats des mesures montrent qu'on collecte en moyenne 7,6 dpm par m^2 par jour de plomb 210 sous forme de retombées sèches. D'autre part, pour une pluviosité moyenne de 1,5 mm par jour, on collecte $1,5 \times 5,5 = 8,25$ dpm par m^2 par jour de plomb 210 dans les précipitations. On voit que le nettoyage par retombées sèches non seulement n'est pas négligeable, mais que sa contribution atteint 40 à 50 % des retombées totales.

Dans le chapitre VIII nous allons discuter de l'importance de ces retombées dans le bilan global du plomb 210.

CHAPITRE VII

CHRONOLOGIE ISOTOPIQUE DE LA GLACE ANTARCTIQUE PAR LA MÉTHODE DU PLOMB 210 CORRÉLATIONS ENTRE LE DÉPÔT DE PLOMB 210 DANS L'ANTARCTIQUE ET L'ACTIVITÉ SOLAIRE

I - INTRODUCTION

L'étude des glaces et des névés du continent antarctique présente un grand intérêt à divers titres. D'une part, les glaces antarctiques représentent 91 % des glaciers du monde, et cette masse de glace, non seulement détermine probablement en grande partie les conditions climatiques locales, mais, de plus, elle a une influence marquée sur les climats régnant sur l'ensemble de la Terre. La connaissance de l'histoire de cette masse de glace est donc très importante, et cependant encore très peu avancée. En particulier, on ne sait pas encore si elle a augmenté ou si elle a décru, non seulement depuis la dernière période glaciaire constatée dans l'hémisphère Nord (période du Wurm) et qui semble avoir cessé assez brusquement, il y a 15 000 ans environ, mais même depuis les derniers siècles. Des mesures précises du taux d'accumulation de la neige comparées aux mesures de fonte du glacier donneraient donc d'intéressants résultats. Le travail que nous décrivons ci-dessous est destiné à permettre une estimation des taux d'accumulation locaux.

D'autre part, les strates de névé qui constituent un réceptacle idéal pour les différents produits, d'origines diverses, précipités en même temps que la neige, permettront, si l'on dispose de méthodes précises pour en mesurer la date de dépôt, de déterminer notamment les taux d'accumulation des matériaux d'origine cosmique ou terrestre déposés à la surface de Globe au cours des temps géologiques récents.

Jusqu'à l'époque de développement des sciences nucléaires, il était très difficile d'obtenir une datation précise de ces glaces.

Le développement des méthodes d'analyse isotopique a permis de faire depuis quelques années un premier progrès. Plusieurs méthodes d'analyses isotopiques ont déjà été utilisées, basées d'une part sur les variations des rapports isotopiques de l'hydrogène et du deuthérium ou de l'oxygène 16 et de l'oxygène 18 ou d'autre part sur la décroissance radioactive du tritium ou du plomb 210 (EPSTEIN et BENSON 1959, BOTTER et al. 1961).

Le premier groupe permet d'obtenir des renseignements analogues à ceux donnés par le comptage des varves dans les régions anciennement glaciaires de l'hémisphère nord. On sait que le rapport H/D dans les eaux terrestres est de l'ordre de 6 400 et que la tension de vapeur des molécules de H_2^{16}O étant plus forte que celles de HD^{16}O , ces dernières sont moins volatiles. Par conséquent, les eaux ou les cristaux de condensation, et par suite, les précipitations sous forme de pluie ou de neige, seront plus riches en HD^{16}O pendant la saison chaude que pendant la saison froide. Il est donc possible par la mesure du rapport H/D dans les strates de névé de différencier les couches d'été des couches d'hiver ce qui permet une chronologie saisonnière de ces strates (LORIUS 1963).

Le même phénomène intervient dans le rapport $^{16}\text{O}/^{18}\text{O}$, l'oxygène 18 représentant dans l'eau environ 0,198 % de l'oxygène total, et là encore, l'isotope lourd est plus abondant dans les condensations à plus haute température.

Toutefois, malgré leur grand intérêt, ces méthodes ne sont pas très précises et les mesures doivent toujours être interprétées. SHARP et EPSTEIN (1962) notent un désaccord systématique entre les valeurs de l'accumulation annuelle déduites de leurs mesures du rapport $^{18}\text{O}/^{16}\text{O}$ et les mesures directes ou déduites de la stratigraphie des divers points de l'Antarctique ouest. Ils pensent que les taux d'accumulation mesurés par le rapport $^{18}\text{O}/^{16}\text{O}$ sont deux fois plus forts que ceux donnés par la stratigraphie. De plus la disparition ou l'amincissement de la couche de neige correspondant à une saison donnée fausse complètement l'interprétation.

Pour surmonter cette difficulté, PICCIOTTO et WILGAIN (1963) ont proposé une méthode basée sur les mesures des retombées radioactives provenant des essais de la bombe thermonucléaire de l'expérience "Castle" (1954) afin d'identifier un niveau de référence correspondant à l'été austral de 1954-1955 présentant une radioactivité notablement plus intense que celle de tous les autres. Cette méthode pourrait être utilisée pour mesurer l'accumulation moyenne sur les dix dernières années.

Une autre méthode est basée sur la décroissance radioactive du tritium, produit continuellement par l'effet du rayonnement cosmique sur l'atmosphère (OESCHER et al. 1962, RENAUD, 1962). Bien que les explosions nucléaires aient introduit dans l'atmosphère depuis 1952 des quantités de tritium qui masquent le tritium naturel, cette méthode peut être utilisée comme méthode de mesure d'âge absolu des couches de glace antérieures à 1954. Cependant, la période du tritium de l'ordre de 12 ans, et sa très faible teneur dans les précipitations (environ 1 atome sur 10^{18} atomes d'hydrogène) limite l'emploi de cette méthode à une cinquantaine d'années. D'autre part, la moindre pollution par les couches de très grande activité formées depuis 1954 rend la mesure très difficile et très peu sûre.

Enfin, GOLDBERG (1962) a envisagé la possibilité d'une méthode de datation basée sur la désintégration du plomb 210 d'origine atmosphérique contenu dans les précipitations. Il l'a appliquée à une carotte de glace de 14 mètres provenant du Groënland et représentant une période de 20 ans environ.

PICCIOTTO et al. (1964) au cours d'une étude approfondie basée sur le même principe ont effectué des mesures de plomb 210 sur des échantillons de neige antarctique. Ils ont étudié le taux d'accumulation annuelle de la neige au pôle sud et à la Base antarctique "Roi Baudouin". Leurs mesures de la concentration en plomb 210 étaient faites par l'intermédiaire de son premier descendant le bismuth 210 émetteur β avec une limite de sensibilité de 2 dpm par échantillon.

Ces mêmes auteurs ont signalé que, s'il était possible d'effectuer ces mesures par l'intermédiaire du polonium 210 descendant du bismuth 210, et émetteur α , la sensibilité des mesures serait augmentée d'un facteur 10.

Au cours de notre travail, nous avons justement mis au point cette dernière méthode, ce qui nous a permis de mesurer la concentration du plomb 210 dans des échantillons de neige antarctique par l'intermédiaire de polonium 210 jusqu'à une limite de 0,05 dpm/échantillon (NEZAMI et al. 1964). De plus l'analyse plus fine des variations de ce nuclide dans nos échantillons nous a conduit à envisager la possibilité d'une certaine corrélation entre l'activité solaire et le dépôt de plomb 210 dans l'Antarctique (LAMBERT, NEZAMI et LABEYRIE 1965).

II - MESURE DU TAUX D'ACCUMULATION DE LA NEIGE AU BORD DU CONTINENT ANTARCTIQUE

a) Origine des échantillons et méthode de prélèvement

Les mesures ont été faites sur deux carottes de névé (désignées A_{5-4} et A_{5-2}), prélevées en Terre Adélie à une distance de 4,6 km au Sud-Ouest de "Pointe Géologie" (66° 41' 16" de latitude Sud et 139° 54' 57" de longitude Est).

A_5 désigne la balise au voisinage de laquelle ont été effectués les carottages.

Distance à la côte : environ 4 kilomètres,

Altitude : 230 mètres,

Température moyenne annuelle : -15,6 degrés centigrades.

La zone occupée par la balise A_5 est relativement calme ; le déplacement annuel doit être environ de quelques mètres. La couche de neige accumulée chaque année est suffisamment compacte pour protéger de l'action du vent les couches de névé sous-jacentes. Il n'y a donc pas d'inversion à prévoir dans les couches.

La carotte A_{5-2} a une longueur de 10 mètres, tandis que la longueur de A_{5-4} est de 18 mètres.

Les prélèvements ont été réalisés en janvier 1964 par C. LORIUS, au cours de la campagne de l'été austral 1963-64.

Les carottages ont été obtenus au moyen d'un carottier de type S.I.P.R.E. (*) dont le diamètre est 7,5 centimètres.

(*) Snow Ice and Permafrost Research Establishment.



Opérations de carottage de la glace au cours de l'expédition
en Terre Adélie (janvier 1964)

Les carottes ont été, dès leur sortie, numérotées mesurées, et enfermées dans des sacs de matière plastique. Le transport et le stockage ont été assurés à l'état solide dans des caisses isolées thermiquement au moyen de polystyrène expansé "Frigolite au Sipror". Elles ont été placées dans les cales réfrigérées du bateau de l'expédition et ensuite dans les chambres froides des Glacières de Paris. La carotte A₅₋₄ a été débitée, en général, en morceaux de 80 cm de long, correspondant à environ 2 litres d'eau, qui ont été ensuite fondus dans des récipients fermés en polyéthylène préalablement lavés à l'eau bidistillée acidifiée à l'acide nitrique. Les échantillons ont été gardés à pH = 1 par adjonction d'acide nitrique.

b) Principe de la méthode de datation

La température toujours inférieure à zéro qui règne dans les régions polaires empêche la fonte des neiges de ces régions. De ce fait aucun phénomène de diffusion ne peut entraîner et mélanger les éléments contenus dans les différentes couches de névé.

Nous avons précédemment indiqué que la période de 21,4 ans (ECKELMANN et al 1960) du plomb 210 (radium D) lui permet de circuler longuement dans l'atmosphère. Cet élément est finalement capturé et déposé au sol par les précipitations, et dans les régions polaires il reste fixé suivant son ordre de dépôt.

Si au moment de la précipitation la neige contient une certaine quantité de plomb 210 correspondant à une activité spécifique A₀, cette activité diminue ensuite exponentiellement en fonction du temps écoulé depuis son dépôt. L'identification de l'âge d'une couche de glace isolée nécessite donc la connaissance de l'activité spécifique initiale A₀ de la neige appartenant à cette couche. Ceci nous conduit à proposer des hypothèses, comme l'ont fait GOLDBERG (1961) et PICCIOTTO (1964).

Considérons deux cas extrêmes :

Cas 1 - La concentration initiale de plomb 210 dans la neige en un lieu donné reste constante en fonction du temps (A₀ = Cte). Dans ce cas, l'âge "t" d'un échantillon appartenant à une couche de profondeur x sera donné par :

$$\begin{aligned} A_x &= A_0 e^{-\lambda t} \\ \text{où} \quad t &= \frac{1}{\lambda} \text{Log} \left(\frac{A_0}{A_x} \right) \end{aligned} \quad (1)$$

A₀ = activité en plomb 210 d'un kilogramme d'eau au niveau zéro

A_x = activité en plomb 210 d'un kilogramme d'eau au niveau x

λ = constante radioactive du plomb 210 (0,032 ± 0,001) années⁻¹.

Cette relation reste valable dans le cas où le taux annuel d'accumulation de l'eau est variable. Si ce taux d'accumulation était constant, nous aurions simplement :

$$t = \frac{x}{a}$$

où a = taux annuel d'accumulation d'eau,

x = profondeur de la couche.

Dans ce cas l'équation (1) s'écrit :

$$\text{Log } A_x = -\frac{\lambda}{a} x + \text{Log } A_0 \quad (2)$$

La représentation graphique de Log A_x en fonction de x donne une droite dont la pente est inversement proportionnelle à "a" ; ce qui nous permet d'évaluer "a", c'est à dire le taux d'accumulation d'eau ainsi que la valeur A₀.

Cas 2 - Le taux de dépôt annuel du plomb 210 est constant, mais la concentration initiale de plomb 210 dans la neige (A₀) et l'apport annuel d'eau sont variables. Soit α le taux d'accumulation annuel du plomb 210 en nombre d'atomes par unité de surface, on a dans ce cas :

$$\alpha = \frac{d(\text{Pb } 210)}{dt} = \text{Cte}$$

L'activité totale du plomb 210 accumulée dans une colonne de neige ayant une surface de base égale à l'unité et une hauteur x correspondant à un intervalle de temps t est donnée par :

$$B_x = \int_0^t \alpha e^{-\lambda t} dt = \frac{\alpha}{\lambda} (1 - e^{-\lambda t}) \quad (3)$$

L'âge "t" de la couche inférieure de cette colonne peut être évalué à partir de l'équation (3). D'après cette équation la valeur de α sera obtenue en posant $t = \infty$. On a donc :

$$\alpha = B_{\infty} \cdot \lambda$$

où B_{∞} = activité totale en plomb 210 d'une colonne dont la hauteur est infinie (pratiquement à quelques pour cent près, une colonne dont la hauteur est équivalente à une accumulation de neige d'une centaine d'années).

Le cas où la retombée annuelle de plomb 210 n'est pas constante sera discuté après l'exposé des résultats.

c) Mesures et résultats

La concentration du plomb 210 a été mesurée par l'intermédiaire de son descendant, le polonium 210, émetteur α , supposé en équilibre séculaire.

L'extraction du polonium 210 a été faite à l'aide du traitement chimique discuté au chapitre IV. Au cours de ce traitement le polonium a été déposé sur une lame d'argent de 1,3 cm de diamètre. Le volume d'eau de chaque échantillon était d'environ 2 litres, correspondant à un morceau de neige ayant 80 cm de longueur. La quantité d'entraîneur (plomb ancien) utilisée pour chaque échantillon, était de 35 mg. Deux traitements semblables à ceux des échantillons ont été effectués sur deux volumes de 2 et 5 litres d'eau bidistillée afin de mesurer l'impureté en plomb 210 existant dans la totalité des produits chimiques utilisés pendant le traitement de chaque échantillon. Afin de maintenir constante l'activité due à ces impuretés nous avons, pour le traitement de tous les échantillons, utilisé une quantité constante de chaque produit chimique nécessaire pour le traitement, ces produits provenant de la même bouteille préalablement sélectionnée. Pour le dernier échantillon dont le volume était exceptionnellement 4,85 litres nous avons utilisé 50 mg d'entraîneur et la quantité des produits chimiques utilisés était de 15 % supérieure à celle correspondant au traitement des autres échantillons.

L'activité des sources de polonium 210 ainsi préparées est mesurée par un spectromètre α à semi-conducteur dont les caractéristiques sont les suivantes :

- détecteur : diode "ortec" de superficie 2,5 cm² ;
- mouvement propre : pour une bande d'énergie de 1 MeV de largeur (comprise entre 4,5 et 5,5 MeV) ;
- = 0,005 coups par minute soit 7,2 coups par jour ;
- rendement de comptage : 25 %.

La limite de sensibilité de la méthode est de 0,05 dpm/échantillon. Cette limite pourrait être diminuée de moitié si on purifiait soigneusement les produits chimiques utilisés pour les débarrasser des impuretés de plomb et de polonium.

La figure (7-1) montre un exemple de spectre α obtenu pour un échantillon de 2 litres ayant une activité voisine de 0,4 dpm/l. On notera que la résolution reste excellente, ce qui démontre l'absence de dérive de l'installation au cours de la journée.

Les résultats des mesures figurent dans le tableau I. La figure (7-2) donne la représentation graphique, en coordonnées semi-logarithmiques, de ces résultats. Sur cette figure, les variations des valeurs de concentration en plomb 210 sont données en fonction de la profondeur exprimée en centimètre d'eau. La figure (7-3) montre la courbe obtenue après avoir groupé les échantillons deux par deux.

On voit que pour la plupart des points l'activité du plomb 210 (dans les limites de l'erreur expérimentale) décroît exponentiellement avec la profondeur. La meilleure interprétation en est que le taux moyen annuel d'accumulation d'eau et la concentration initiale du plomb 210 dans la neige sont à peu près constants en moyenne pendant les 70 dernières années. Ceci confirme la première hypothèse proposée dans la section b (équation (2)). La valeur de la concentration de la neige en plomb 210 au moment de sa chute (1,48 dpm/l) est proche des valeurs trouvées par PICCIOTTO (1964) à la Base "Roi Baudouin" et au Pôle Sud (respectivement 1,24 et 1,8 dpm/l). Ceci montre que la concentration du plomb 210 dans la neige varie peu dans tout le continent antarctique.

La pente de la droite, déterminée par la méthode des moindres carrés, correspond à une accumulation moyenne annuelle de 13,8 cm d'eau, avec une précision de 10 à 15 pour cent. Cette

Tableau I

Résultat de mesure de la première carotte

Echan- tillon	Profondeur en cm d'eau		Concent. en Pb 210 dpm/litre	Age estimé de la base en Déc. 1963	Date de la forma- tion	Concentrat. initiale dpm/litre
	au milieu	à la base				
1	18,4	36,8	1,50	2,67 ans	Av. 1961	1,56
2	55,6	74,4	1,50	5,39	Juil. 1958	1,71
3	92,8	111,2	1,14	8,06	Déc. 1955	1,42
4	130,0	148,8	1,08	10,78	Mars 1953	1,47
5	168,8	188,8	0,91	13,68	Avr. 1950	1,37
6	210,8	232,8	0,95	16,87	Fév. 1947	1,55
7	254,0	275,2	0,72	19,94	Jan. 1944	1,30
8	297,6	320,0	0,66	23,19	Oct. 1940	1,33
9	342,4	364,8	0,43	26,43	Juil. 1937	0,96
10	387,2	409,6	0,91	29,68	Avr. 1934	2,27
11	433,0	456,4	0,56	33,07	Déc. 1930	1,55
12	480,8	505,2	0,42	36,61	Mai 1927	1,30
13	529,6	554,0	0,39	40,14	Oct. 1923	1,35
14	578,8	603,6	0,43	43,74	Mars 1920	1,68
15	628,4	653,2	0,34	47,33	Août 1916	1,43
16	678,4	703,6	0,29	50,98	Déc. 1912	1,45
17	728,8	754,0	0,22	54,63	Avr. 1909	1,17
18	779,6	805,2	0,13	58,34	Août 1905	0,82
19	830,8	856,4	0,33	62,05	Déc. 1901	2,36
20	882,4	908,4	0,20	65,82	Fév. 1898	1,60
21	934,4	960,4	0,15	68,59	Mai 1894	1,4

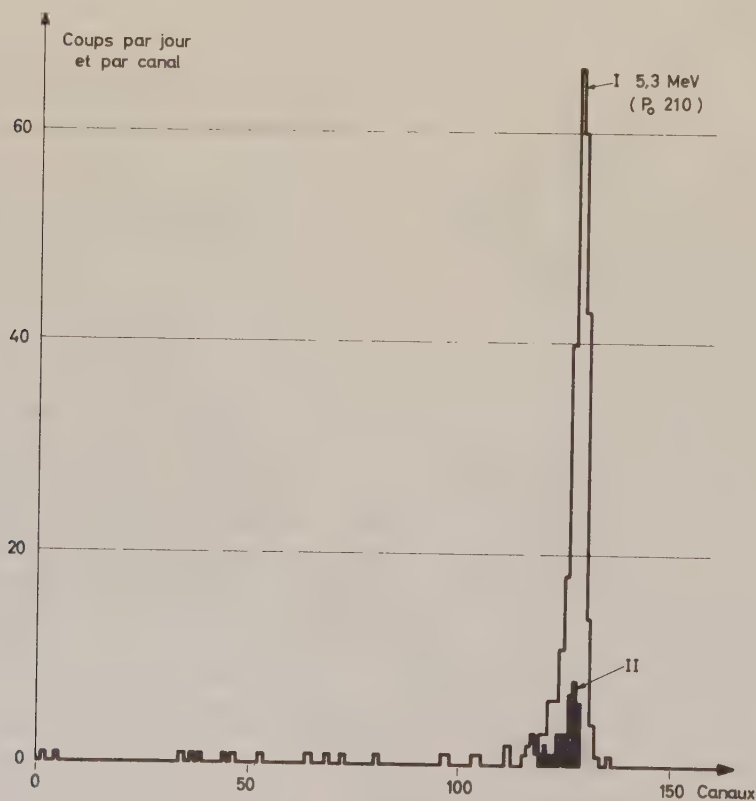


Fig. 7.1. I. Spectre α d'un échantillon de névé : - échantillon n° 12 (profondeur 9,6 mètres) ; - activité = 0,8 d.p.m. - 10 KeV par canal - Résolution 0,8 % - II. Spectre d'un même volume d'eau distillée ayant subi le même traitement.

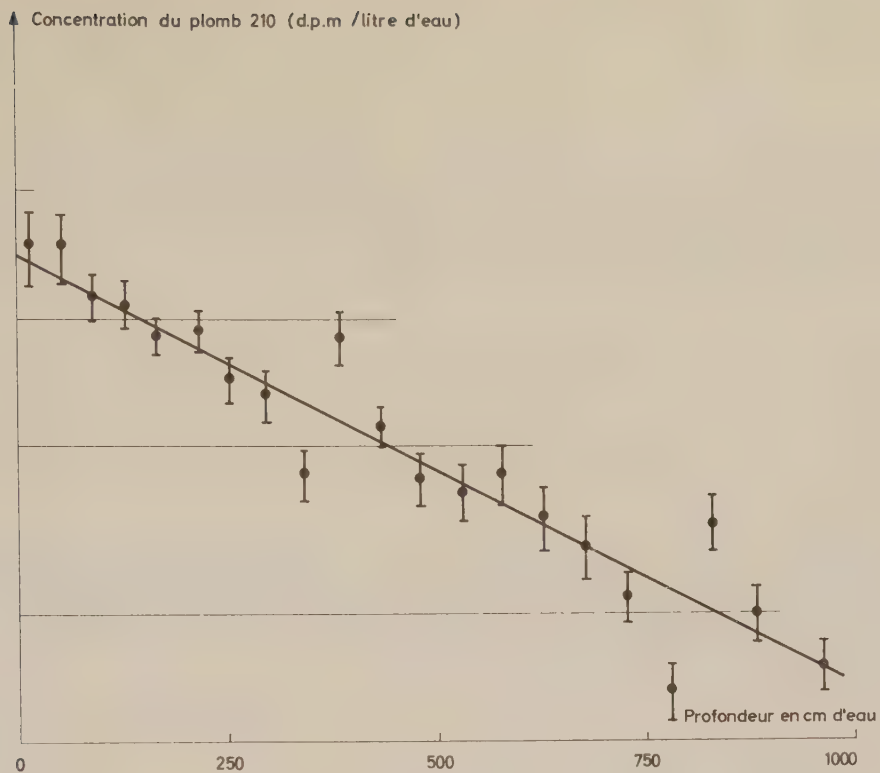


Fig. 7.2.

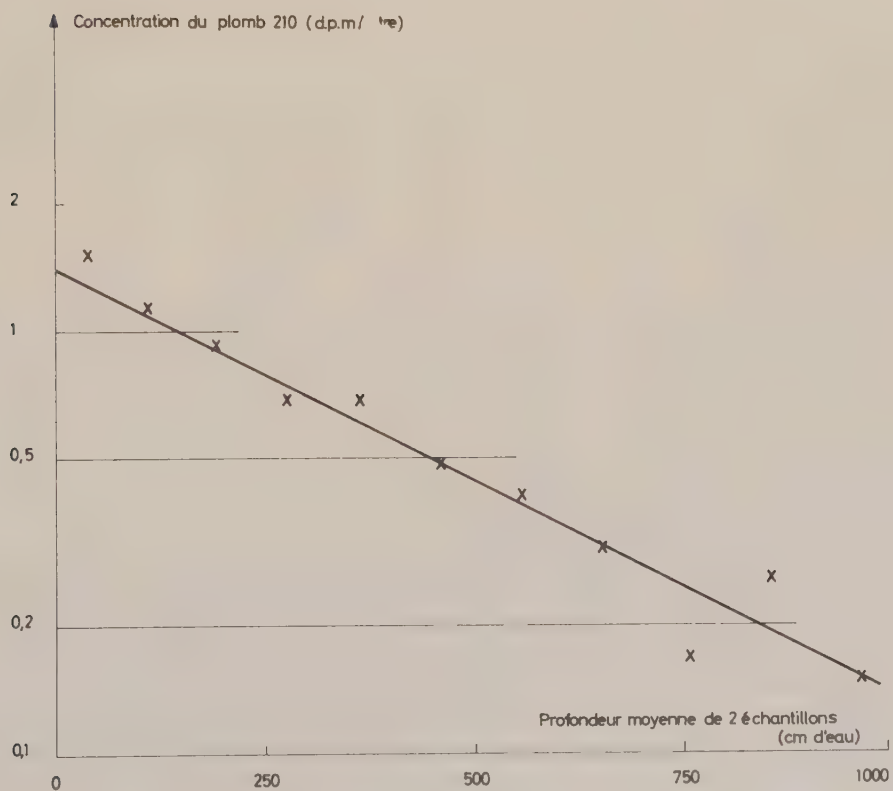


Fig. 7.3.

valeur correspond à environ 30 cm de névé (densité 0,46). Des mesures directes effectuées au même endroit, depuis janvier 1958, par observation de différents repères d'accumulation ont conduit à la valeur assez voisine de 24 cm de névé par an en moyenne (les valeurs annuelles observées variant de 8,7 à 48,5 cm de névé (LORIUS C. Communication personnelle).

La valeur du taux d'accumulation annuelle permet d'estimer le temps d'accumulation représenté par chaque échantillon : il varie entre 2,6 et 3,7 années. Dans ces conditions, les fluctuations du taux d'accumulation de la neige et de la concentration des précipitations en plomb 210 devraient être limitées. On voit cependant sur la figure (7-2) des points dont les fluctuations restent largement en dehors des erreurs expérimentales. Ceci nous a conduit à chercher une explication à cette anomalie et à éliminer les phénomènes qui pourraient en être la cause.

III - CORRELATION ENTRE LE DEPOT DE PLOMB 210 DANS L'ANTARCTIQUE ET L'ACTIVITE SOLAIRE

Nous avons d'abord tenu à vérifier par d'autres mesures, l'existence des points singuliers, précédemment notés.

Nous avons par conséquent étudié une deuxième carotte, prélevée en même temps que la première à quelques mètres de distance de celle-ci. La figure (7-4) résume les résultats obtenus pour les deux carottes. On y constate l'existence, aux mêmes niveaux, de fluctuations comparables. Afin d'éviter les erreurs expérimentales tant au cours du prélèvement qu'au cours du traitement ou de la mesure, nous avons utilisé pour cette deuxième série de mesures, des échantillons d'une longueur différente (65 cm au lieu de 80).

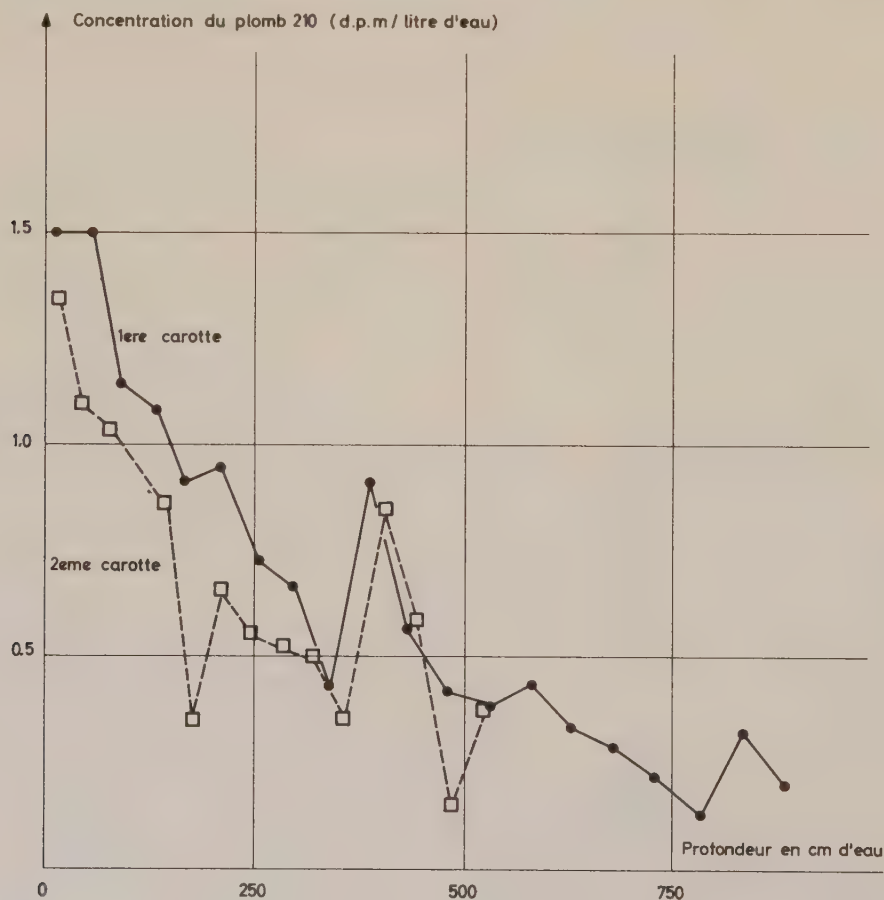


Fig. 7.4.

Les fluctuations ont donc bien une existence réelle. Aucune des explications suivantes à ce phénomène ne peut être retenue :

1/ les fluctuations ne peuvent pas être dues à un phénomène local de courte durée, accidentel ou aléatoire, tel que le "chasse neige", chaque échantillon de névé représentant l'accumulation de neige pendant une durée de plusieurs années.

2/ Les fluctuations constatées ne peuvent pas être dues à de simples variations du taux d'accumulation de la neige supposée uniformément chargée en plomb 210 au moment de sa chute (ce qui est d'ailleurs le cas dans 70 % de nos mesures). Ces différences de taux d'accumulation de la neige ne pourraient produire que de faibles variations de l'âge supposé des échantillons, et par conséquent de très faibles fluctuations de la concentration de plomb 210 mesurée.

Les fluctuations que nous avons constatées ne pourront donc être dues qu'à des variations accidentelles de la concentration du plomb 210 dans la neige au moment de sa chute.

On observe une certaine périodicité dans ces fluctuations. La durée de ce cycle est environ 11 ans, donc voisine de celle de l'activité solaire. Ceci nous conduit à étudier les corrélations qui pourraient éventuellement exister entre ces fluctuations et celles de l'activité solaire.

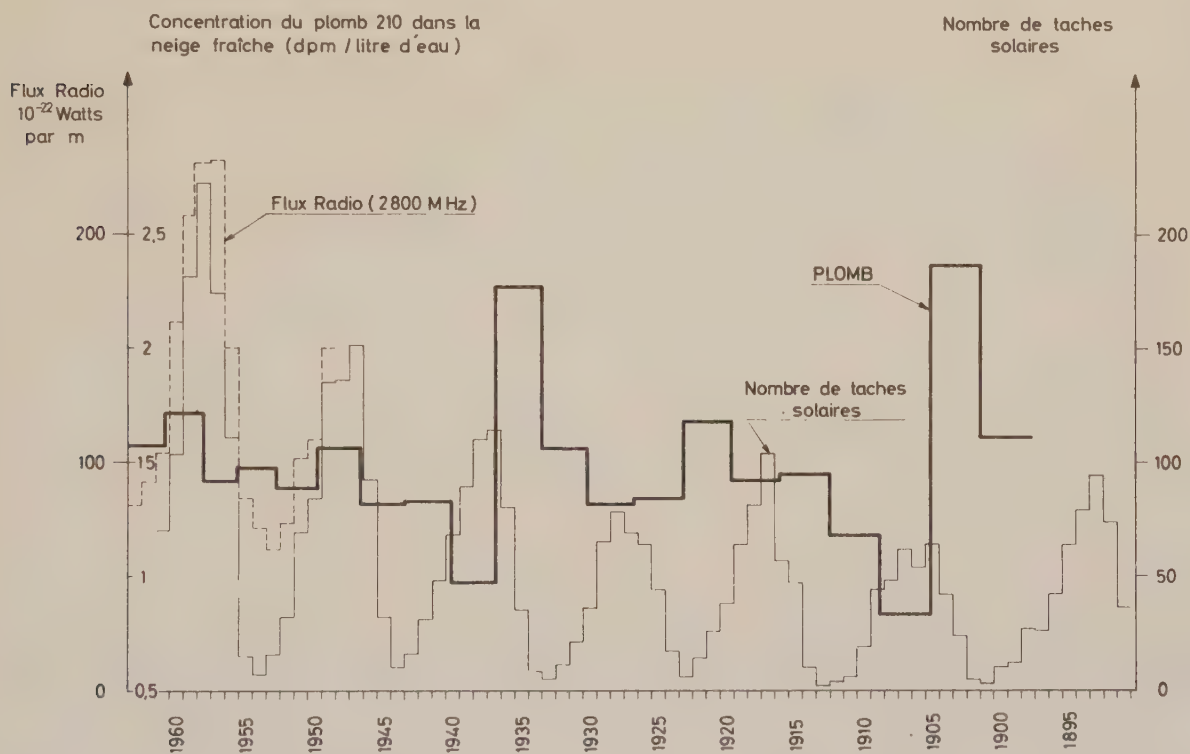


Fig. 7.5.

Nous avons donc porté sur un même graphique en fonction du temps (fig. 7-5) d'une part, la concentration de plomb 210 dans la neige, calculée au moment de sa chute (par correction de décroissance) et d'autre part, de deux paramètres caractéristiques de l'activité solaire : le nombre de taches et le flux annuel moyen du rayonnement solaire dans la bande de 2800 MHz. On voit que les trois derniers maximums d'activité solaire (1958-1947 et 1937) correspondent assez bien aux maximums de concentration du plomb 210, il semble cependant qu'au delà des dates citées (avant 1937) il n'existe plus de bonnes corrélations, mais il faut remarquer qu'une petite erreur sur le taux annuel moyen d'accumulation de la neige produit à la longue un décalage de plusieurs années entre l'âge estimé et l'âge réel des échantillons. Toutefois, si l'on admet un taux annuel d'accumulation d'eau d'environ 15,5 cm/an (un peu supérieur à la valeur maximale 15,3 cm/an estimée précédemment) il existe une excellente corrélation entre les maximums de l'activité solaire et les

maximums de la concentration en plomb 210 dans la neige, ces derniers étant en retard d'environ un à deux ans (fig. 7-6).

Cette valeur de 15,5 cm d'eau par an nous conduit suivant l'équation :

$$\text{Log } A_x = -\frac{\lambda}{a} x + \text{Log } A_0$$

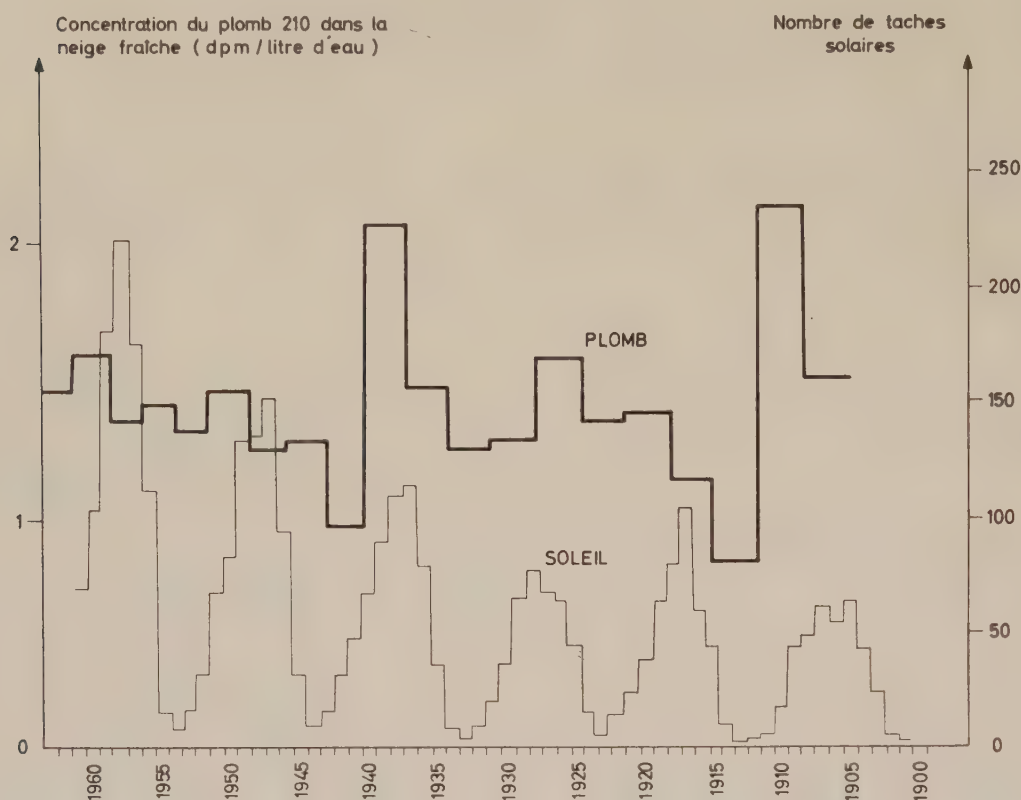


Fig. 7.6.

à adopter une valeur différente pour la période du plomb 210 qui serait alors plus proche de la valeur déterminée par J. TOBAILEM (1955), c'est à dire 19,4 ans au lieu de 21,4 ans admis antérieurement.

La première explication que l'on pourrait admettre au sujet de cette corrélation, est qu'une partie importante du plomb 210 collecté par la neige serait d'origine solaire, le décalage d'un à deux ans constaté entre les maximums d'activité solaire et les maximums de concentration du plomb 210 correspondant au temps moyen nécessaire pour le transfert des aérosols submicroniques de la stratosphère dans la haute troposphère (LAMBERT 1963) (Anonyme Rapport ONU 1962).

Si cette hypothèse est exacte, il faudrait pour que les fluctuations soient nettes, que l'apport supplémentaire de plomb 210 provenant du soleil soit du même ordre de grandeur que l'apport régulier de plomb 210 à la surface de la Terre. Ceci correspondrait à un apport minimum d'environ $22 \cdot 10^{24}$ atomes de plomb 210 par an (LAMBERT et NEZAMI 1964).

Toutefois le flux de protons solaires qui atteint la Terre est très inférieur à $1,5 \times 10^{34}$ /an (qui est le flux qui atteindrait une surface égale à la section droite de la Terre à grande distance de la cavité magnétique terrestre). Il faudrait donc au moins un atome de plomb 210 pour 10^9 protons pour rendre compte de ce flux de plomb 210. Cette abondance relative qui correspond à celle de l'ensemble du plomb dans la photosphère (ALLER 1961, UNSOLD 1948) paraît invraisemblable pour le seul isotope 210.

Il semble donc plus logique de supposer que cette corrélation est due à une modulation, par un phénomène solaire, soit de l'apport de plomb 210 au-dessus des régions antarctiques, soit du mécanisme de précipitation au sol de ce plomb.

Diverses manifestations solaires ont été utilisées par de nombreux chercheurs pour essayer de déterminer s'il existe une relation réelle entre l'activité solaire et certains phénomènes terrestres, particulièrement dans le domaine de la météorologie tels que précipitation, pression et température (MANLEY 1961, WARD et SHAPIRO 1961, SCHUURMANS 1965). En général les résultats ne conduisent pas à une théorie précise liant les effets climatiques aux variations solaires. Ceci est dû en partie à la grossièreté ou au manque de validité des méthodes statistiques utilisées et en partie au fait que les enregistrements météorologiques continus n'existent que depuis relativement peu de temps par rapport à la durée des cycles solaires.

Bien entendu, l'existence même de ces corrélations et leur interprétation ne pourront être établies que si de nombreux carottages effectués en d'autres points de ce continent, viennent confirmer les résultats exposés ici.

CHAPITRE VIII

COMPORTEMENT ET BILAN DU PLOMB 210 ATMOSPHÉRIQUE

Le plomb 210 est le seul radioélément naturel à longue période injecté dans l'atmosphère à partir d'un gaz. Il est donc intéressant d'envisager son utilisation comme traceur des mouvements lents des masses d'air, en particulier des échanges troposphère-stratosphère.

Avant toute chose, il convient cependant d'essayer d'établir un bilan du plomb 210 dans l'atmosphère, c'est à dire de voir si les quantités qui retombent sont égales aux quantités injectées. C'est cette tentative que nous allons décrire ci-dessous.

Le radon 222 est un des éléments formés par la désintégration de l'uranium 238 présent dans le sol. Ce gaz s'échappe de la croûte terrestre avec un taux de dégagement qui a pu être estimé par divers auteurs. En particulier, ISRAEL (1951) indique un dégagement moyen de 42 atomes par minute et par centimètre carré de continent. Sa durée de vie de 5,5 jours lui permet de diffuser dans la troposphère et même, pour une faible partie, environ 1 %, dans la stratosphère où peuvent ainsi s'accumuler le radium D (plomb 210) et ses descendants. Il y a donc deux circuits différents pour le plomb 210 suivant que le radon s'est désintégré dans la troposphère ou dans la stratosphère.

I - FORMATION DU PLOMB 210 DANS LA TROPOSPHERE

La plus grande partie du radon se désintègre dans la première centaine de mètres de l'atmosphère. Du fait de l'existence d'une barrière de diffusion équatoriale dans la troposphère et d'une répartition très inégale des continents entre les deux hémisphères, les quantités globales de radon, et par conséquent de plomb 210, atmosphériques sont très différentes dans l'hémisphère Nord et dans l'hémisphère Sud.

Le deuxième trait caractéristique de la troposphère vient du nettoyage extrêmement intense provoqué par la circulation de l'eau dans l'atmosphère. Le temps de séjour moyen des aérosols dans la troposphère, comme nous l'avons montré (chapitre V) est inférieur à une quarantaine de jours. Le plomb 210 a donc le temps de se mettre en équilibre radioactif avec le bismuth 210 (période 5 jours) mais absolument pas avec le descendant de ce dernier le polonium 210 (période 138 jours). Ceci explique que nous ayons trouvé dans l'eau des précipitations récentes environ 9 fois moins de polonium 210 que de plomb 210.

À ces retombées humides, nous avons vu au chapitre VI qu'il fallait ajouter les "retombées sèches". Les retombées sèches sont très importantes dans le cas du dépôt actif du radon (y compris le plomb 210) par suite des concentrations élevées de ces nuclides dans les plus basses couches de l'atmosphère. Dans ces conditions, on doit s'attendre à ce que le dépôt sec soit d'autant plus intense que la concentration atmosphérique des aérosols est plus élevée. Si l'on considère, à la surface de la Terre, des zones définies par leur latitude, les zones de latitude où la proportion de continents est élevée, donc où les sources de radon sont abondantes, seront caractérisées par une forte concentration d'aérosols radioactifs naturels, mais aussi par un taux de dépôt beaucoup plus élevé.

Le bilan final du plomb 210 dans l'atmosphère devrait donc faire apparaître que les transferts méridiens du nord vers le sud de ce nuclide sont particulièrement faibles. Effectivement, la retombée annuelle de plomb 210 est environ 35 fois plus grande dans la région de Paris (5 dpm/litre avec 700 litres par an par mètre carré et autant pour les retombées sèches), qu'en Terre Adélie (1,5 dpm/litre avec 135 litres par an par mètre carré), ainsi qu'on l'a indiqué dans les chapitres V et VII.

II - LE PLOMB 210 DANS LA STRATOSPHERE

Comme nous l'avons rappelé précédemment, MACHTA et LUCAS (1962) ont montré qu'une partie du radon atmosphérique pouvait atteindre la basse stratosphère. Une faible part du plomb 210 s'y forme donc à l'état monoatomique. Les aérosols ultra fins du plomb 210 ainsi formé subiront les lois générales des aérosols dans la stratosphère établies par LABEYRIE (1953) et JUNG (1958) : c'est à dire qu'ils viendront se fixer sur des aérosols de plus grandes dimensions, radioactifs ou non, présents dans la stratosphère.

Ce phénomène est analogue à celui qui a été décrit dans le cas de la radioactivité artificielle injectée dans la stratosphère par les explosions nucléaires (COLLINS 1962, MACHTA et al. 1964). Par conséquent, le temps moyen de séjour du plomb 210 dans la basse stratosphère doit être égal au temps moyen de séjour des aérosols radioactifs artificiels soit environ 2 ans. Ce temps est suffisamment long pour que le plomb 210 se mette en équilibre radioactif avec son descendant à longue période le polonium 210.

L'interprétation des résultats des mesures de concentrations du plomb 210 et du polonium 210 dans l'eau de pluie exige que l'on tienne compte des deux facteurs de déséquilibre que nous avons signalés pour ces nuclides (chapitre V), que leur origine soit troposphérique ou stratosphérique.

Il convient de noter que le temps moyen de séjour que nous avons trouvé, compris entre 33 et 42 jours, est long par rapport au temps nécessaire pour qu'une masse d'air effectue un trajet très important. Les valeurs de retombées de plomb 210 que nous avons trouvées dans la région parisienne sont très voisines de celles trouvées antérieurement par d'autres auteurs en Angleterre, en Allemagne de l'ouest, à Moscou et à Washington, soit dans une bande de latitude comprise entre 45° et 55° de latitude nord. Nous avons attribué cette répartition régulière au fait que la circulation générale de l'atmosphère d'ouest en est, à ces latitudes, est rapide et que la durée moyenne pour obtenir un dépôt homogène est faible par rapport au temps moyen de séjour des aérosols dans la troposphère.

Il est intéressant, comme l'avait fait GOLDBERG (1962), à partir de ces données, de comparer les valeurs obtenues pour le dépôt de plomb 210 sur tout le Globe à celles qui sont relatives au dégagement de radon par la croûte terrestre.

Chaque atome de radon introduit dans l'atmosphère y donne rapidement un atome de plomb 210. Toutefois le temps de séjour de celui-ci dans l'ensemble de l'atmosphère n'étant pas infiniment court par rapport à sa période, une partie s'y désintègre pour former du bismuth et du polonium 210 et surtout du plomb 206 stable. De ce fait on doit s'attendre à ce que la première valeur soit légèrement supérieure à la seconde.

Nous allons donc tenter, en premier lieu, à partir de ces mesures d'établir un bilan entre le dégagement de radon et les retombées de plomb 210 dans la bande de latitude comprise entre 45° et 55° nord, puis, en l'absence de mesures directes et en nous basant sur certaines hypothèses, nous essaierons d'étendre ce bilan à la surface du globe.

A. Bilan du plomb 210 entre 45° et 55° de latitude Nord

a) *Evaluation du dégagement de radon*

Bien qu'il n'existe que relativement peu de données numériques sur le flux de dégagement du radon, on peut admettre, pour la zone de latitude étudiée, le chiffre d'ISRAEL (1951) confirmé par SERVANT pour la France (1964). Ce flux est de l'ordre de $2 \cdot 10^{11}$ atomes/an/m² de continent. En tenant compte de la surface de terres émergées dans cette zone ($16,52 \cdot 10^{12}$ m²) on obtient comme dégagement total de radon $33,04 \cdot 10^{23}$ atomes/an.

b) *Evaluation de la retombée totale de plomb 210*

On constate dans cette zone en moyenne une concentration de 5,5 dpm de plomb 210 par litre d'eau de pluie, ce qui, pour une pluviosité moyenne de 650 mm/an représente 3575 dpm/m² de plomb 210 par an ou 9,7 dpm/m²/jour en moyenne. Si l'on admet que les retombées sèches ne sont pas modifiées les jours où se produisent les précipitations il convient d'ajouter à cette valeur environ 2774 dpm/m²/an représentant un dépôt sec de 7,6 dpm/m²/jour. Ceci donne finalement un dépôt de 10^{11} atomes/m²/an. Ce qui nous donne pour la totalité de la surface de la zone étudiée une retombée de plomb 210 de $29,19 \cdot 10^{23}$ atomes/an.

On constate donc, dans cette zone, un bon accord entre les deux valeurs, avec toutefois une valeur légèrement inférieure pour la retombée en plomb 210.

Ce léger déficit peut être expliqué, soit par la raison qu'il a en partie décru dans l'atmosphère, comme nous l'avons dit plus haut ou comme nous le verrons plus loin, soit par une trop forte évaluation du dégagement du radon (dégagement moins fort à partir des terrains inondés ou enneigés) ou par une évaluation trop faible de l'ensemble des retombées de plomb 210 (retombées plus importantes sur les océans que sur les continents).

B. Essai de généralisation de ce bilan à l'ensemble du Globe

Pour tenter de généraliser ce bilan à l'ensemble du Globe, nous ne possédons que peu de renseignements, et nous sommes amenés à émettre un certain nombre d'hypothèses :

a) Retombées sèches

Nous avons des valeurs de la concentration en plomb 210 dans l'air de la basse atmosphère le long du 80ème méridien ouest (LOCKHART 1964) ainsi qu'en France, dans l'Atlantique nord et le Pacifique sud (LAMBERT, POLIAN). On peut estimer à partir de celà la valeur de la retombée sèche en supposant qu'elle est proportionnelle à la concentration dans l'air dans la basse atmosphère en l'absence de précipitation. A partir de la valeur de la concentration dans l'air et la valeur de la retombée sèche mesurée à Gif, on peut calculer ce facteur de proportionnalité. On a calculé (colonne 4) en pour cent, le rapport entre les concentrations en plomb 210 de l'air aux diverses latitudes et celles de l'air à Gif. En l'appliquant aux mesures des concentrations dans l'air aux différentes latitudes, et en tenant compte des surfaces des zones représentées par ces bandes de latitudes, on peut estimer la retombée sèche en atomes par an (colonne 5 du tableau I).

b) Retombées humides

- On connaît la pluviosité moyenne dans les différentes bandes de latitude (MARTONNE). Pour l'Antarctique, on utilisera une valeur moyenne de 12 centimètres d'eau par an, en se basant sur les résultats obtenus par PICCIOTTO et par nous-mêmes.

- On admet, dans l'eau de pluie, une proportionnalité entre les concentrations en plomb 210 et les concentrations de la radioactivité artificielle. En utilisant les valeurs de plomb 210 et de radioactivité artificielle mesurées entre 45 et 55° nord, on peut calculer ce facteur de proportionnalité et l'appliquer aux données que l'on a à toutes les latitudes sur les retombées artificielles. On obtient ainsi les valeurs données dans la colonne 9 du tableau I.

Il faut noter que dans les régions de latitude supérieure à 65°, on a admis que la concentration mesurée dans la glace de 1,5 dpm/litre d'eau représente la somme des retombées sèches et humides.

Tableau I
Estimation du dépôt de plomb 210 à la surface du Globe

Latitude	Surface de la zone 10 ¹² m ²	Surface des continents 10 ¹² m ²	Facteur de correction des retombées sèches %	Retombées sèches 10 ²³ atom/an	Pluviosité mm/an	Concentration de la pluie dpm/l	Retombées humides 10 ²³ atom/an	Retombées totales 10 ²³ atom/an	Retombées par unité de surface 10 ⁹ atom/an/m	Dégagement de radon 10 ²³ atom/an
90°N-65°N	24,07	9,94	0	0	350	1,5(*)	2,00(*)	2,00(*)	8,3(*)	0
65°N-55°N	22,34	13,82	50	5,02	420	2	2,97	7,99	35,7	27,64
55°N-45°N	28,66	16,52	100	12,70	650	5,5(*)	16,38(*)	29,10(*)	100(*)	33,04
45°N-15°N	114,17	44,85	100	51,38	800	2	29,00	80,38	70,4	89,70
15°N-0	65,72	15,15	50	14,79	1700	0,5	8,87	23,66	36,0	30,30
0-20°S	86,86	19,81	20	7,81	1500	0,5	10,34	18,15	20,8	39,62
20°S-35°S	58,95	12,28	40	10,61	850	2	15,92	26,53	45,0	24,56
35°S-55°S	62,75	2,35	20	5,65	800	2	15,94	21,59	34,4	4,70
55°S-65°S	22,31	0,04	10	1,00	550	1,5	2,92	3,92	17,5	0,08
65°S-90°S	24,07	14,13	0	0	120	1,5(*)	0,67(*)	0,67(*)	2,7(*)	0
Total	509,90	148,89		109			105	214		249,64

(*) Valeurs mesurées.

On constate sur le tableau :

a) la quantité minimale du plomb 210 déposé à la surface du Globe est de l'ordre de $21,4 \cdot 10^{24}$ atomes par an. Toutefois, il convient d'insister sur le caractère minimal de cette estimation qui ne tient pas compte du supplément de retombées à la surface des océans signalé par plusieurs auteurs (BOWEN et al. 1960, CHESSELET et al. 1963, CHESSELET et al. 1965).

b) si l'on représente (fig. 8-1), le taux de retombée par unité de surface (calculé comme on vient de le dire) en fonction de la latitude, on obtient une courbe à deux maximums assez semblable à celles qui ont été établies expérimentalement pour le strontium 90, ce qui résulte des hypothèses de calcul choisies.

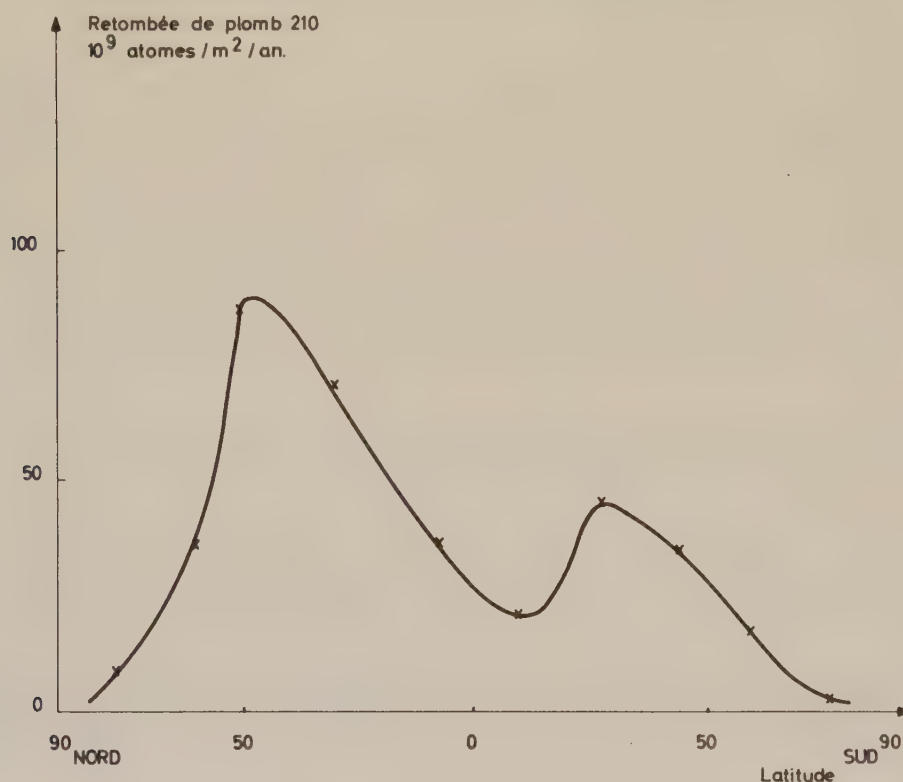


Fig. 8.1 Estimation des retombées de plomb 210

c) la part des retombées sèches reste, sur l'ensemble du Globe, voisine de 50 % ainsi qu'il en était dans la zone comprise entre 45 et 55° nord.

d) si on calcule le bilan par hémisphère, on obtient les chiffres suivants :

	Dégagement de radon ($\cdot 10^{23}$ atomes/an)(*)	Retombée de plomb 210 ($\cdot 10^{23}$ atomes/an)
Hémisphère nord	181	143
Hémisphère sud	69	71
Total	250	214
Rapport sud/nord	0,38	0,50

(*) Cf. Paragraphe suivant.

On voit sur ce tableau que tout se passe comme si 20 % de plomb 210 formés dans l'hémisphère nord étaient transférés dans l'hémisphère sud.

On a ensuite, comme précédemment pour la bande de latitude comprise entre 45 et 55° nord, calculé le dégagement de radon pour chaque zone afin de la comparer au chiffre obtenu pour la retombée de plomb 210. On obtient les valeurs données dans la dernière colonne du tableau I.

Il est remarquable que dans de nombreuses bandes de latitude on constate un certain équilibre entre le nombre d'atomes de radon dégagés et ceux de plomb 210 déposés : c'est le cas des bandes situées entre 55° et 45° nord, 45° et 15° nord, 15° nord et l'équateur, 20° et 35° sud. Dans l'ensemble du Globe on constate que nous avons une retombée totale de plomb 210 très légèrement inférieure au chiffre adopté pour le dégagement du radon. Bien que ce résultat soit conforme aux prévisions, on ne doit pas oublier qu'il présente une très grosse incertitude, le nombre de données numériques de base étant très insuffisant. De plus il est probable que les retombées de plomb 210 ont été sous-estimées puisqu'il semble que les retombées sur les océans soient plus importantes que celles que l'on mesure sur les continents, comme nous l'avons indiqué précédemment. D'autre part, le chiffre moyen de dégagement du radon que nous avons adopté est probablement un peu trop fort, car il ne tient pas compte de l'enneigement hivernal du continent asiatique ni de l'inondation du sol dans les régions équatoriales. Ainsi, malgré l'excellent accord entre le bilan total de dépôt du plomb 210 et le dégagement du radon, tels qu'ils figurent dans le tableau, ces bilans devront absolument être repris lorsqu'on disposera de nouvelles données numériques, en particulier dans les régions équatoriales.

CONCLUSION

L'installation de spectrométrie α à semi-conducteur que nous avons utilisée, nous a permis, par ses hautes performances, la réalisation d'études fines et étendues dans divers domaines.

La haute résolution de ce spectromètre (0,35 % pour les particules α d'énergie de 6,087 MeV du bismuth 212) rend possible la mesure précise de l'énergie des particules α et la détermination d'une partie de la structure fine des spectres de ces particules. Ceci nous a permis d'établir un recueil de spectres α de divers émetteurs naturels.

Par une technique simple, nous sommes arrivé à réaliser le spectre direct du radon et de ses descendants à vie courte.

Le faible mouvement propre du détecteur (quelques coups par jour) et la haute stabilité de l'électronique associée, permettant d'effectuer un comptage pendant un temps aussi long qu'on le désire, rend possible l'application de ce spectromètre dans le domaine des très faibles activités.

Nous avons, tout au long de ce travail, profité de ces deux propriétés pour mesurer dans les eaux de pluie, les retombées sèches et les strates de glace, les traces de plomb 210 atmosphérique par l'intermédiaire de son descendant le polonium 210 émetteur α , et tenté d'établir à partir de nos mesures et des mesures effectuées par d'autres auteurs du bilan de la circulation du plomb 210 dans l'atmosphère.

Pour effectuer ces mesures, nous avons été amené à mettre au point une nouvelle méthode de séparation chimique du polonium 210. Le rendement de cette méthode d'analyse est supérieur à 80 % pour les eaux de pluie et de fusion des glaces polaires. La limite des mesures significatives est de 0,05 dpm, ce qui donne une sensibilité de détection du plomb 210 par l'intermédiaire du polonium 210, 40 fois supérieure à celle des méthodes existant déjà.

Nous avons, pendant 7 mois, du 15 septembre 1963 au 15 avril 1964, mesuré les teneurs en plomb 210 et en polonium 210 de l'eau de pluie recueillie à Gif-sur-Yvette. Ces mesures nous ont montré que la teneur en plomb 210 et en polonium 210 de l'eau de pluie était sensiblement constante en fonction du temps et que la valeur moyenne pour le plomb 210 était 5,3 dpm/litre (de 3,4 dpm/litre à 7,2 dpm/litre) et de 0,6 dpm/litre (de 0,4 dpm/litre à 0,9 dpm/litre) pour le polonium 210.

Ces résultats sont en accord avec ceux obtenus par BURTON et STEWART dans le sud des Iles Britanniques, LEHMANN et SITTKUS en Allemagne, BARANOV dans la région de Moscou, et BLIFFORD dans la région de Washington. Ces cinq points sont situés dans la même bande de latitude nord (45° à 55° N). Nous avons expliqué cette constance des concentrations en plomb 210 par le fait que la circulation générale de l'atmosphère d'ouest en est à ces latitudes est rapide et que la durée moyenne pour une rotation des masses d'air autour de la Terre est courte vis à vis du temps moyen de séjour des aérosols dans la troposphère.

Le déséquilibre qui est noté entre le plomb 210 et son descendant le polonium 210 a été attribué au nettoyage des aérosols par voie humide aussi bien que par voie sèche, empêchant l'équilibre de s'établir entre le plomb 210 et son descendant à vie longue. Ceci nous a amené à reconsidérer les équations permettant la détermination du temps de résidence des aérosols dans la troposphère, et, par l'introduction d'un facteur de correction, de déterminer des valeurs du temps moyen de séjour des aérosols dans la troposphère. Ces valeurs sont comprises entre 33 et 42 jours.

Les résultats précédents ne concernent que les retombées humides. Nous avons étudié, par ailleurs, les concentrations en plomb 210 des retombées sèches. On a pu établir que, en moyenne, la retombée sèche s'élevait, dans la région étudiée, à 7,6 dpm/m²/jour. En comparant cette valeur

à celle trouvée dans les eaux de précipitation (pour une journée présentant une pluviosité moyenne) 9,7 dpm/m²/jour, on constate que le nettoyage par retombée sèche peut atteindre 40 à 50 % des retombées totales.

Une autre série de mesures a été entreprise sur des échantillons de glaces antarctiques. L'intérêt de cette étude est que si le plomb 210 est déposé à la surface du sol, dans un milieu dépourvu d'uranium, et dans des conditions physico-chimiques telles qu'aucune migration de ce nuclide ne puisse se produire au sein du sédiment, la mesure relative de sa concentration dans les couches sédimentaires successives nous permettra de déterminer l'époque de la formation de ces couches.

Comme nous l'avons montré dans le chapitre VII, ces conditions sont réunies dans le sédiment très particulier constitué par les strates des névés du continent antarctique. Le climat est suffisamment froid pour supprimer tout phénomène de fusion superficielle, et le plomb 210 reste fixé dans les couches successives du névé. Il y donne naissance à du polonium 210, pratiquement en équilibre radioactif au bout d'une année. La mesure de l'activité α du polonium 210 permet alors, ici aussi, de remonter à la concentration de plomb 210, avec tous les avantages des mesures de rayonnement α par rapport aux mesures sur les rayonnements β (faible bruit de fond des appareils, possibilités spectrographiques, absence de contamination artificielle), mais aussi avec leurs inconvénients (nécessité de mettre le nuclide à mesurer sous forme de source mince).

Après les séparations chimiques minutieuses décrites dans le chapitre IV, nous avons pu analyser ainsi la concentration du plomb 210 tout le long de deux carottes de névé provenant du continent antarctique. On a vu que cette concentration décroît bien exponentiellement avec la profondeur de la neige analysée, et nous avons pu ainsi déterminer que le taux annuel d'accumulation est, à l'endroit du prélèvement, de $13,8 \pm 1,5$ cm d'eau, soit environ 30 cm de névé fraîchement tombé (moyenne établie sur 70 ans).

A cette répartition moyenne régulière des concentrations de plomb 210, à différentes profondeurs, se superposait un certain nombre de fluctuations, d'importances inégales, qui pouvaient passer pour le résultat d'erreurs de mesures. Toutefois, la deuxième carotte, prélevée à quelques mètres de distance de la première, présentait des fluctuations comparables aux mêmes niveaux.

A la suite d'une étude plus détaillée exposée dans le chapitre VII, nous avons démontré que ces fluctuations ne peuvent être dues qu'à des variations de la concentration du plomb 210 dans la neige au moment de sa chute.

Ces variations se présentant avec une période d'environ 11 ans, nous avons tenté de comparer les courbes obtenues pour les concentrations du plomb 210 (calculées au moment de sa chute) et celles de l'activité du Soleil établies soit à partir du nombre de taches solaires, soit à partir des valeurs du flux solaire à 2800 MHz.

La période du plomb 210 n'est pas connue avec précision : suivant les auteurs elle varie de 19,4 ans à 21,4 ans. Si on utilise la valeur de 21,4 ans, comme nous l'avons fait initialement, on constate que trois des maximums de concentration de plomb 210 correspondent à des périodes de grande activité solaire. Si on utilise la valeur de 19,4 ans, les cinq maximums sont alors en concordance avec les maximums d'activité du soleil, aux erreurs expérimentales près. Il semble donc qu'on puisse établir une corrélation entre les retombées de plomb 210 dans les régions antarctiques et l'activité solaire.

La très faible teneur en uranium, tant du soleil que des poussières d'origine cosmique ne permet pas à l'heure actuelle d'attribuer les corrélations observées à une provenance extra terrestre du plomb 210. Il est donc plus raisonnable de penser que le plomb 210 mesuré dans la neige de l'Antarctique provient du réservoir atmosphérique déjà signalé, l'action du soleil se faisant sentir, par un mécanisme encore inconnu, pour favoriser la précipitation des aérosols lors des années à forte activité solaire.

A partir de l'ensemble de ces mesures et d'un certain nombre d'hypothèses, nous avons tenté d'établir un bilan entre le dégagement de radon des continents et les retombées de plomb 210.

En 1962, GOLDBERG, intéressé par les possibilités d'utilisation du plomb 210 comme traceur, tentait d'effectuer ce bilan global. Toutefois, GOLDBERG n'a établi ce bilan qu'à partir d'une valeur moyenne de dégagement de radon et d'une valeur de retombées humides de plomb 210 évaluée en Angleterre.

Possédant un certain nombre de données numériques dans une bande de latitude située entre 45° N et 55° N, nous avons établi le bilan pour cette zone de latitude et nous avons constaté que

le dégagement de radon et la retombée en plomb 210 étaient pratiquement en équilibre. Le léger déficit de plomb 210 a pu être expliqué par divers processus.

Nous avons ensuite, à partir de ces données et en utilisant toutes les données existant sur le plomb 210, tenté de généraliser ce bilan à l'ensemble du Globe en émettant quelques hypothèses. Ce bilan général, bien qu'approximatif, nous montre qu'il existe un assez bon accord entre le taux de dégagement de radon et le dépôt de plomb 210.

Ce travail permet de confirmer l'intérêt de l'étude du plomb 210 pour éclaircir un certain nombre de problèmes géophysiques. Nous n'avons pu malheureusement apporter ici qu'un nombre restreint de mesures. Cette étude, dans les différents domaines que nous avons abordés, doit être poursuivie, et une généralisation des mesures à la surface du Globe devrait permettre de confirmer ou d'infirmer ce travail que, bien qu'en y constatant de nombreuses lacunes, nous nous permettons de verser au dossier du comportement général du plomb 210.

Manuscrit reçu le 6.9.1965

BIBLIOGRAPHIE

- ALLER L.H. - The abundance of the elements (Livre) 1961, p. 123.
- ANONYME - LINDE COMPANY. Division of Union Carbide, New-York.
- ANONYME - The physics of precipitation formation : A collection of Articles (Russian Translation) , Moscou, Izd. Vo inostr. bt. (Foreign Literature Publishing House) 1951.
- ANONYME - Rapport O.N.U. du Comité Scientifique pour l'étude des Effets des Radiations Ionisantes, 1962.
- ANONYME - Rapport H.A.S.L.
- BAGNALL - Chemistry of the rare Radioelements, livre Londres, 1957.
- BARANOV V.I. - Retombée atmosphérique du plomb 210, Radiokhimiya (U.R.S.S.), 1962, 4, (4) - p. 493-496.
- BLANKENSHIP J.L. and BORKOWSKI C.J. - Silicon surface barrier nuclear particle spectrometer. I.R.E. Trans. Vol. NS 7, n° 2-3, p. 190-195 (1960).
- BLANKENSHIP J.L. and BORKOWSKI C.J. - Performance of Silicon surface Barrier Detector with charge sensitive amplifier. I.R.E. Trans. Nucl. Sci., U.S.A., NS 8, n° 1, 1961, p. 17-20.
- BLIFFORD I.H. et al. - On Natural Radioactivity in the air. J. Géophys. Res. 57, 4, 499 (1952)
- BOTTER R., LORIUS C. et NIEF G. - Sur la datation des couches de névé dans l'Antarctique à partir de leur concentration en deutérium. C.R. Acad. Sci. Paris, 252, p. 437, 1961.
- BOUISSIÈRE G. et FERRADINI C. - Emploi de la dithizone pour séparer et purifier le radium D, le radium E et le polonium. Anal. Chim. Acta, 4, 610, 1950.
- BOUISSIÈRE G. et HAISSINSKY M. - Nouveau Traité de Chimie Minérale - (Livre) - PASCAL P. Tome I p. 1079, 1956.
- BOWEN V.T. et al. - Strontium 90 in the "Mixed Layer" of the Atlantic Ocean. Nature 186, 71-72 - 1960.
- BURKE T. and NOLAN J. - Observation of the Radium A content of the Atmosphere. Proc. Roy. Irish. Acad. 53, Ser A, n° 9, 1950.
- BURTON W.M. and STEWART N.G. - Use of long-lived natural radioactivity as an atmospheric tracer. Nature 186, 584-589, 21 May 1960.
- CHARLOT G. - Les méthodes de la chimie analytique (Livre), p. 87, 1961.
- CHESSELET R., NORDEMANN D. et DUSSARD B. - Détermination par détection nucléaire des coefficients de diffusion et des courants dans les eaux naturelles. Evaluation de la surface de collection d'un grand lac Alpin pour les retombées radioactives. Com. coll. Emploi radio-isotopes Tokyo, 1963.
- CHESSELET R., NORDEMANN D. et LALOU C. - Etude comparative des taux de retombées radioactives maritimes et continentales C.R. Acad. Sci. Paris, 260, p. 2875-2878, 8 Mars 1965.
- COLLINS Jr., W.R. - Sr. 90 deposition on the earth's surface from 1958 through, 1962, PP. 240-247 in USAEC report HASL-135 ; v.e. United Nations document A/AC. 82/G/I.83.

- COLLINS Jr., W.R. - Sr. 90 deposition on the earth's surface from 1958 through 1963, USAEC report HASL - 146 pp. 241-248, (1964).
- DEARNALEY G. and NORTHROP D.C. - Semiconductor counters for Nuclear Radiations (Livre) 1963.
- ECKELMANN W.R., BROEKER W.S. et KULP J.L. - Half-life of Pb 210. Phys. Rev., 113, 1960, p. 698-701.
- EPSTEIN S. and BENSON C. - Oxygen isotope Studies - Trans. Am. Geophys. Union, 40, p. 81-84, 1959.
- FACY L. - Déplacement des particules d'aérosols au cours des processus de diffusion moléculaire. C.R. Acad. Sciences, 246, 102-104, 1958.
- FACY L. - Mécanisme de capture des particules d'aérosols par une gouttelette en voie de condensation-évaporation. C.R. Acad. Sciences, 246, 3161-3164, 1958.
- FANO V. - Phys. Rev., 72, 26, 1947.
- FONTAN J. - Thèses Fac. Sciences, Toulouse, 29 Fév. 1964.
- FRIEDLAND S.S., MAYER J.W., DENNEY J.M. and KEYWELL F. - Room temperature operated p.n junctions as charged particle detectors. Rev. Sci. Instr. 31, 74 (1960).
- FRY L.M. and MENON K.K. - Determination of tropospheric residence time of Lead 210, Science, 137, n° 3534, 1962.
- GOLDBERG E.D. - Symposium A.I.E.A. Datage Radioact. Athènes, Nov. 1962, p. 121, Geochronology with lead 210.
- GOULDING S.F. and HANSEN W.L. - Leakage current in semiconductor junction radiation detectors and its influence on energy resolution characteristics, Nuclear Instruments and Methods, 12, 249-262 (1961).
- GREENFIELD S. - Rain scavenging of radioactive particulate matter from the Atmosphere, J. Meteor. 14, n° 2, 1957.
- HAISSINSKY M. - Electrochimie (Livre), 1946.
- HAISSINSKY M. - Nouveau Traité de Chimie minérale, Pascal XIV, p. 2054, 1961.
- HAXEL O. und SCHUMAN G. - Selbstreinigung der atmosphäre Zs. Physik 142, 1955, 127-132.
- ISHIMORI T. - The separation of Ra D,E,F, with cation-exchanger Bull. Chem. Soc. Japan 28, 432 (1955).
- ISHIMORI T., NAKAMURA E. and AKATSU J. - Technetium dithizonate J. Atomic Energy Soc. Japan, 3, 767 (1961).
- ISRAEL H. - Compendium of meteorology, Am. Meteor. Soc. Boston, 1951.
- JEHANNO C. et LABEYRIE J. - 2ème Confer. intern. Genève - Util. pac. ener. atom., 15, p. 329, 1958.
- JUNGE C.E. - Adv. Geophys. 4, 1-108, 1958.
- KAROL' I.L. - Bulletin (Izvestja). Acad. of Sci. U.R.S.S., Geophys. Series, 1963.
- KOCH L. et MESSIER J. - Détecteurs de rayonnements nucléaires à semi-conducteurs - Génie Atomique, 1963.
- KOCHAROV G.E. and KOROLEV G.A. - A High resolution Ionization Alpha Spectrometer - English Trans. of the Bulletin of the Academy Sciences of the U.R.S.S. - Phys. Series, Vol. 25, n° 2, (1961).
- LABEYRIE J. - Thèse 1953. Fac. Sci. Paris.
- LABEYRIE J. et LAMBERT G. - L'existence d'une barrière de diffusion entre les troposphères des hémisphères Nord et Sud. C.R. Acad. Sci. 256, 2664-2667, Mars 1963.
- LAMBERT G. - Thèse - Fac. Sci. Paris - Nov. 1963.
- LAMBERT G. - L'aspect discontinu des transferts entre la stratosphère et la troposphère C.R. Acad. Sci. Paris, 256, 19, 4064-4067, 1963.

- LAMBERT G. and NEZAMI M. - Determination of the Mean Residence Time in the troposphere by Measurement of the Ratio between the concentration of Lead-210 and polonium-210. *Nature* 206, june 26, p. 1343, 1965.
- LAMBERT G. et NEZAMI M. - Importance des retombées sèches dans le bilan du plomb-210. *Annale Géophysique* (sous presse).
- LAMBERT G., NEZAMI M. et LABEYRIE J. - Corrélation entre le dépôt de plomb-210 dans l'atmosphère et l'activité solaire. *C.R. Acad. Sci. Paris*, 260, p. 619-623, 11 janvier 1965.
- LAMBERT G. et POLIAN G. - Diffusion à basse altitude des masses d'air continentales et océaniques dans chaque hémisphère. *C.R. Acad. Sci. Paris*, 256-20, 4265-4267, 1963.
- LAMBERT G. et POLIAN G. - 1964, non publié.
- LEFORT M. et TARRAGO X. - 1965, communication personnelle.
- LEHMANN L. und SITTKUS A. - Bestimmung von aerosolverweil - zeiten aus dem RaD und RaF. gehalt der atmosphärischen Luft und des Niederschlage. *Naturwiss*, 46, 1, 9, 1959.
- LOCKHART L.B. et coll. - June 1964, Rapport NRL 6104.
- LORIUS C. - Terre Adélie - Campagne d'été 1961 - 1962, *Glaciologie, Expd. polaires françaises*, 241, 1963.
- LORIUS C. - Thèse 1963, Fac. Sci. Paris.
- MABUCHI H. - Extraction of Tellurium with dithizone. *Bull. Chem. Soc. Japan*, 29, 842 (1956).
- MACHTA L., LIST R.J. and TELEGADAS K. - Inventories of selected long lived radioisotope, produced during nuclear testing, pp. 243-260 in USAEC, A/AC. 82/G/L. 871, Jan. 1964.
- MACHTA L. and LUCAS H.F. - Radon in the upper Atmospher. Sciences, 135, 295-299, Janvier 1962.
- MAKHON'KO K.P. - The problem of the nature of the spectrum of the dimension of particles of radioactive dust of natural origin. *Izv. AN S.S.S.R. Seriya Geophiz.* 1962.
- MALAKHOV S. and SOLODIKHINAL L.D. - In "Problems of Nuclear Meteorology" - edited by KAROL'I, L., MALAKHOV S.G., *Grosatomizdat*, 1962, p. 183.
- MANLEY G. - Solar variations, Climatic change and related geophysical problems. *Nature*, Vol. 190, n° 4780, June 10, 1961, p. 967.
- MARTONNE E. - *Traité de géographie physique*, A. Colin ed.
- MAYER J.W. - The development of the junction detector, *I.R.E., Trans. Nucl. Sci.* NS-7, n° 2-3, 778 (1960).
- MAYER J.W. and GOSSIK B.R. - "Use of an-ge broad aera barrier as alpha-particle spectrometer" *Rev. Sci. Instr.* Vol. 27, P. 407-408, June 1956.
- Mc KENZIE J.M. and WAUGH J.B.S. - Silicon junctions as particle spectrometers, *I.R.E., Trans., Nucl. Sci.* NS-7 n° 2-3, 195 (1960).
- NEZAMI M., LAMBERT G., LORIUS C. et LABEYRIE J. - Mesure du taux d'accumulation de la neige au bord du continent antarctique par la méthode du plomb-210. *C.R. Acad. Sci. de Paris*, 259, p. 3319-3322, 9 nov. 1964.
- NGUYEN B.C., CHESSELET R., LAMBERT G. et NORDEMANN D. - Etude des échanges directs entre l'atmosphère et la surface du Globe. *Coll. Intern. sur la pollution radioactive des milieux gazeux*, Saclay, 12 au 16 Nov. 1963.
- OESCHER H., RENAUD A. et SCHUMACHER E. - Essai de datation par le tritium des couches de névé du Jungfraufirn et détermination de l'accumulation annuelle. *Bull. Soc. Vaud. Sci. Nat.* n° 306, Vol. 68, p. 49, 1962.
- PICCIOTTO E., CROZAZ G. et DE BREUCK W. - Antarctic Snow chronology with Pb 210. *J. Geophys. Res.* 69, n° 12, Juin 1964, p. 2597-2604.
- PICCIOTTO E. and WILGAIN S. - Fission products in Antarctic Snow. A reference level for measuring accumulation. *J. Geophys. Res.* 68, 5965, (1963).
- RABY B.A. and HYDE E.K. - UCRL 2069, p. 23 (1952).

- RANKAMA K. and SAHAMA Th.G. - Geochemistry, p. 734.
- RENAUD B. et al. - Tritium variation in Greenland ice. Symp. on trace gases and natural and artificial radioactivity in the atmosphere. I.U.G.G. - W.M.O. Utrecht. 1962.
- ROUX G. - Préamplificateur à faible bruit sensible à la charge - Rapport interne non diffusé.
- ROUX G. - "Loupe" avec mise en forme - Rapport interne non diffusé.
- ROUX G. - Spectromètre utilisant les détecteurs à semi-conducteurs, 1963. Rapport C.E.A. n° 2388.
- SANDELL E.B. - Colorimetric Determination of traces of Metals (Livre), 1959, p. 139.
- SCHUURMANS C.J.E. - Influence of solar flare particles on the general circulation of the atmosphere. Nature, vol. 205, n° 4967 - January 9, 1965.
- SERVANT J. - Thèse 1964, Fac. Sci. Paris.
- SHARP R.P. and EPSTEIN S. - Symp. of Obergugl, Sept. 1962, Intern. Assoc. Sci. Hydrol., Publ. 58, 273 (1962).
- SHEPPARD P.A. - Colloque Franco-Belge - 6, 12 Mars 1965.
- SHOCKLEY W. and READ W.T. - Phys. Rev., 1952, 87, 835.
- SHVEDOV A.A., YOUSSEFOVITCH D.I. et GEDEONOV - Commission à l'Energie Atomique de l'U.R.S.S. - Moscou, 1963, Document O.N.U. A/AC 82/G/L.899.
- SISEFSKY J. - Activities roughly proportional to volume are found in particles examined by autoradiography and microscopy. Sciences Vol. 133 March 17, p. 735, 1961.
- SPENKE E. - Semi-conducteurs électroniques Dunod, Paris 1959 (Livre).
- STIERSTADT K. und RAPP M. - Aerosole als Träger der natürlichen Radioaktivität, Atomkern - 5 n° 12, 1960.
- STROMINGER D., HOLLANDER J.M. and SEABORG G.T. - Tables of isotopes - Review of Modern Physics. Vol. 30, n° 2, part 2, Avril 1958.
- STYRO B.I. - Problems of Nuclear Meteorology, Vil'nyus, Izv. VO AN Litov-SSR (Publishing House of Lithuanian SSR 1959) p. 285, 297-312, 346, 355.
- STYRO B.I. et al. - On the problem of the measurement of the activity of individual raindrops. Transaction of the Academy of Sciences Lithuanian SSR, Series B-2, 2, 1955.
- TOBAILEM J. - Phys. Rad., 16, 1955, p. 235.
- TOVE P.A. et FALK K. - Transit time of charge carriers in the semiconductor Ionization chamber. Nucl. Inst. and Method. Vol. 12, n° 2, p. 278 (1961).
- UNSOLD A. - Z. Ap., 24, 1948, p. 306.
- VASSY A. et TANAEVSKY O. - Radioactivité artificielle et ozone, traceurs en météorologie dynamique. Pure and Applied Geophysics, Vol. 59, 1964/III, p. 239, 242.
- WARD F. and SHAPIRO R. - Solar, Geomagnetic and meteorological periodicity - Annals. Acad. New-York, 95, 1961, pp. 202-224.
- WILKENING M.H. - Rev. of Scient. Inst., 23, n° 1, 1952.
- ZIMIN A.G. - Mechanisms of capture and precipitation of atmospheric contaminants by clouds and precipitation - in "Problems of Nuclear Meteorology" - Gosatomizdat, 1962, p. 139, 178.

DEUXIEME THESE

Propositions données par la Faculté

"POUSSIÈRES COSMIQUES DANS L'ATMOSPHERE".

Vu et approuvé :

Paris, le 9 Juin 1965

Le Doyen de la Faculté des Sciences,
de Paris.

Marc ZAMANSKY

Vu

et Permis d'imprimer :

Paris, le

Le Recteur de l'Académie

de Paris,

Jean Roche

IMPRIMERIE LOUIS-JEAN

Ouvrages scientifiques

TYPO-OFFSET

GAP (Hautes-Alpes)

Dépôt légal n° 69
1966

